



Leibniz Universität Hannover

Fakultät für Mathematik und Physik

Institut für Radioökologie und Strahlenschutz

Bachelorarbeit

**Gamma-spektrometrische Untersuchungen von Wässern aus
norddeutschen Trinkwassergewinnungsgebieten**

Vorgelegt von: Felix Hentel

Matrikelnummer: 3118960

7. August 2017

Erstprüfer: Prof. Dr. Clemens Walther

Zweitprüfer: Dr. Stefan Bister

Eigenständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst habe. Ich versichere, dass ich keine anderen als die angegebenen Quellen benutze und alle wörtlich oder sinngemäß aus anderen Werken übernommenen Aussagen als solche gekennzeichnet habe und dass die eingereichte Arbeit weder vollständig noch in wesentlichen Teilen Gegenstand eines anderen Prüfungsverfahrens gewesen ist.

Hannover, den 7. August 2017.

Felix Hentel

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
1.1. TransAqua	1
1.2. Ziel der Untersuchung	2
2. Herkunft und Entnahme der Proben	3
2.1. Untersuchungsgebiete	3
2.2. Probennahme und -aufbereitung	5
3. Aktivitäten, natürliche Zerfallsreihen und anthropogene Radionuklide	9
3.1. Radionuklide	9
3.2. Aktivität und Halbwertszeit	9
3.3. Radioaktive Gleichgewichte	10
3.4. Natürliche Zerfallsreihen	12
3.5. Betrachtete Radionuklide	14
3.5.1. Cs-137	14
3.5.2. K-40	15
4. Grundlagen der Gamma-Spektrometrie	17
4.1. Wechselwirkungsarten	17
4.2. Aufbau und Funktion	20
4.2.1. Der verwendete Detektor	21
4.3. Detektorkalibrierung	22
4.4. Grundlagen der Auswertung	22
4.4.1. Efficiencykalibrierung	22
4.4.2. Spezifische Aktivität	24
4.4.3. Messunsicherheiten	27
4.4.4. Nachweisgrenzen	27
4.5. Methodenvalidierung	28
5. Ergebnisse	31
5.1. Messergebnisse	32

Inhaltsverzeichnis

6. Diskussion	37
7. Fazit und Ausblick	45
8. Verzeichnisse	51
A. Anhang	57
A.1. Ergänzungen	57
A.1.1. Natürliche Radionuklide	57
A.1.2. Radioaktive Gleichgewichte	58
Danksagung	65

1. Einleitung

Die folgende Arbeit beschäftigt sich im Bereich der Radioökologie speziell mit dem Eintrag von natürlichen sowie künstlichen Radionukliden in Wässern aus der Umgebung Hannovers.

In der Radioökologie wird allgemein untersucht, wie sich Radionuklide in der Umwelt verhalten. Dabei steht vor allem die Beurteilung der Strahlenexposition des Menschen im Vordergrund und daher kann die Radioökologie als Teilgebiet des Strahlenschutzes betrachtet werden. Um die Belastung durch ionisierende Strahlung abzuschätzen, werden das Migrationsverhalten und Ausbreitungspfade analysiert.

Diese Arbeit liefert Beiträge zu einem Arbeitspaket im Verbundprojekt Transaqua, auf welches folgend genauer eingegangen wird.

1.1. Über das Projekt TransAqua

Das Verbundprojekt Transaqua hat sich das allgemeine Ziel gesetzt, die Strahlenexposition des Menschen durch Radionuklide in aquatischen Ökosystemen genauer zu untersuchen. Dies geschieht in mehreren interdisziplinären Teilprojekten, die in Tabelle 1.1 dargestellt sind.

Tabelle 1.1.: **Die Teilprojekte von Transaqua** [Mü15]

Teilprojekt 1	Oberflächenwasser - Eintrag und Transport von Radionukliden
Teilprojekt 2	Grund- und Tiefenwasser, Trinkwasser - Freisetzung und Nachweis von Radionukliden in Grund- und Trinkwasser
Teilprojekt 3	Biokinetik - Biokinetische Stoffwechselmodelle im Menschen und deren Validierung
Teilprojekt 4	Kontaminierte Wässer - Migrationsverhalten von Radionukliden in bergbaulichen und städtischen Abwässern
Teilprojekt 5	Ausbildung und Nachwuchsförderung - Forschungsaufenthalte, Austauschprojekte, Sommerschulen

1. Einleitung

Diese Arbeit ist im Arbeitspaket 2.2: "Sensitivität von Trinkwasserreservoirien in Bezug auf den Eintrag von künstlichen Radionukliden" angesiedelt. Dieses gehört zum Teilprojekt 2 und befasst sich mit der Untersuchung von Trinkwasserreservoirien in Bezug auf die anthropogenen und anthropogen beeinflussten Radionuklide (siehe Kapitel 3.1) ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr , ^{129}I , ^{137}Cs und $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$. Diese werden zum Beispiel durch kerntechnische Anlagen emittiert und führen so zu einer diffusen Belastungen der Atmosphäre. Durch Niederschläge gelangen die Radionuklide in Oberflächengewässer und können das Grundwasser infiltrieren. [Mü15]

1.2. Ziel der Untersuchung

In dieser Arbeit werden Wasserproben aus stehenden und fließenden Oberflächengewässern sowie Regenwasser und Grundwasser aus unterschiedlichen Tiefen gamma-spektrometrisch untersucht. Hierbei wird insbesondere Caesium-137 betrachtet. Die ermittelten Caesium-137-Gehalte sollen in der Folge Rückschlüsse über die Migration in die untersuchten Trinkwasserreservoire durch die diffusen Einträge aus der Umwelt in Folge von Kernwaffentests und insbesondere des Reaktorunglücks in Tschernobyl erlauben. Weiterhin werden auch andere gamma-spektrometrisch messbare Radionuklide untersucht. Hierbei ist neben den Nukliden aus den natürlichen Zerfallsreihen Kalium-40 von besonderem Interesse, da es sich chemisch ähnlich wie Caesium verhält.

Die vorliegende Arbeit berücksichtigt dabei auch die in der Masterarbeit "Nachweis von Radionukliden in norddeutschen Trinkwasserreservoirien" von Sebastian Faßbender [Faß16] bereits gemessenen Proben. Die Ergebnisse der vorangegangenen Arbeit werden gemeinsam mit den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit interpretiert.

2. Herkunft und Entnahme der Proben

Das folgende Kapitel soll einen Überblick darüber geben, woher die in dieser Arbeit gemessenen Proben stammen und wie diese für die Gamma-Detektion aufbereitet wurden.

2.1. Untersuchungsgebiete

Das Hauptuntersuchungsgebiet ist das Trinkwassergewinnungsgebiet Fuhrberger Feld (siehe Abbildung 2.1). Dieses liegt etwa 25 Kilometer nord-nordöstlich von Hannover und umfasst ein Schutzgebiet von 300 Quadratkilometern. Die beiden Wasserwerke Elze-Berkhof und Fuhrberg produzieren etwa 88% des Gesamttrinkwassers Hannovers. Damit ist dieses Gebiet der signifikant größte Wasserlieferant der Region Hannover.[AG15]

Das Fuhrberger Feld ist ein Beispiel für ein Trinkwassergewinnungsgebiet mit ungeschütztem Grundwasserleiter. Das Grundwasser wird dort aus einer Tiefe zwischen 25 und 28 Metern gefördert, oberhalb einer kreidezeitlichen Tonschicht. Bis zu dieser Tonschicht besteht der Boden überwiegend aus Sanden und kiesigen Sanden. Dies hat zur Folge, dass Niederschläge in nur wenigen Jahren die Grundwasserschicht erreichen. [FPD⁺97]

Von großem Vorteil ist weiterhin, dass das Fuhrberger Feld als bestehendes Forschungsgebiet eine gute Infrastruktur für die Entnahme von Wasserproben aus verschiedenen Gewässern, Regionen und Tiefen aufweist und die geologischen Strukturen wie in [FPD⁺97] beschrieben gut erforscht sind.

Das zweite Trinkwassergewinnungsgebiet ist der Westharz mit zwei Talsperren, der Söse-talsperre und der Granetalsperre, wobei aus zeitlichen Gründen letztere in dieser Arbeit nicht berücksichtigt werden kann. Die Talsperren werden direkt durch Niederschläge ohne Filterung durch den Boden gespeist. Somit können diese als offene Trinkwasserreservoire dem Grundwasser-Trinkwassergewinnungsgebiet Fuhrberger Feld gegenübergestellt werden. Es wurden sowohl Proben aus der Talsperre als auch dem Ablauf der Talsperre genommen.

Das Trinkwasser aus dem Westharz liefert einen Beitrag von 7% für das Gesamttrinkwasser in Hannover. Die restlichen 5% stammen aus dem Wasserwerk Grasdorf, in dem das

2. Herkunft und Entnahme der Proben

aus der Leine gewonnene Trinkwasser mit dem Harzwasser gemischt und in das Trinkwassernetz eingespeist wird. [AG15]

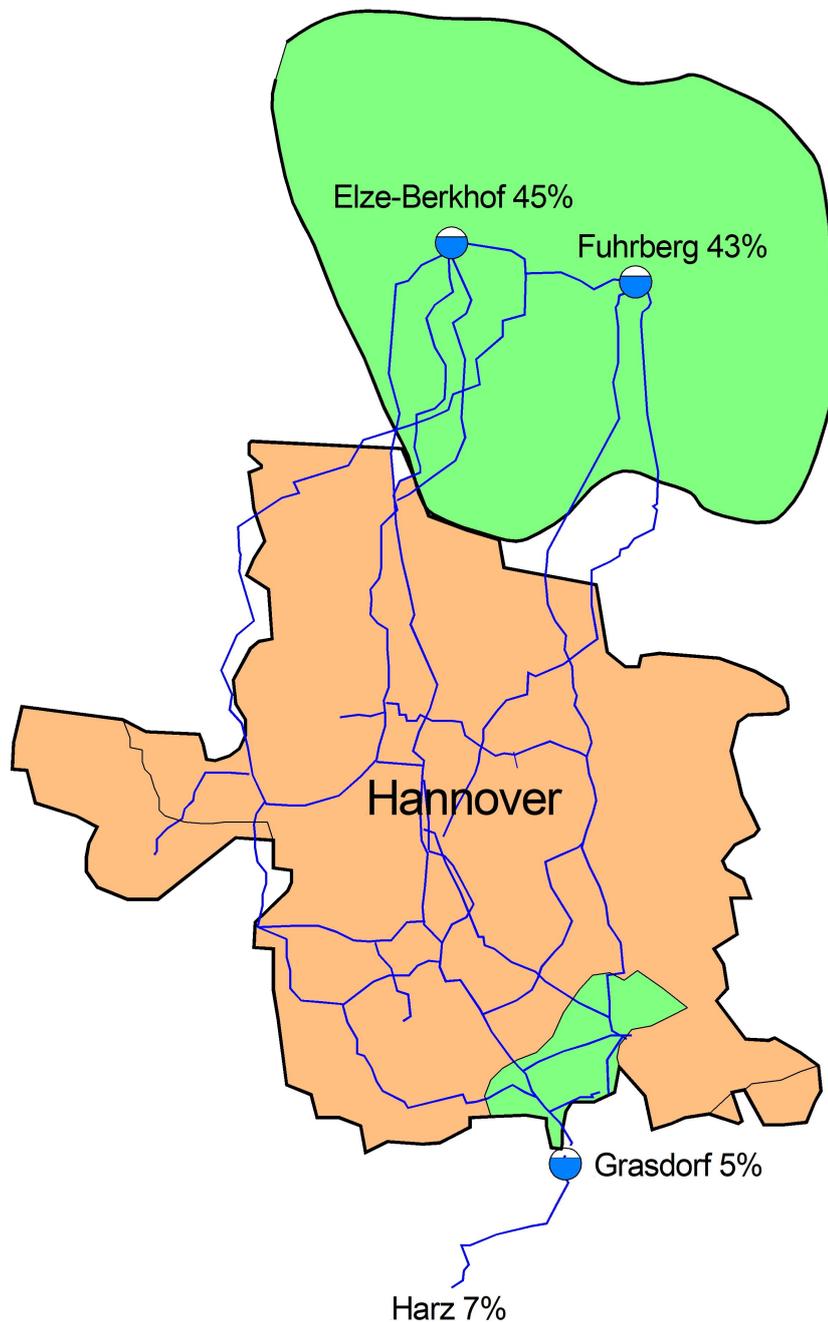


Abbildung 2.1.: **Trinkwasser aus der Region Hannover** Die Abbildung zeigt die Region Hannover sowie die Lage das Fuhrberger Feldes und der Wasserwerke, die in das Trinkwassernetz einspeisen.

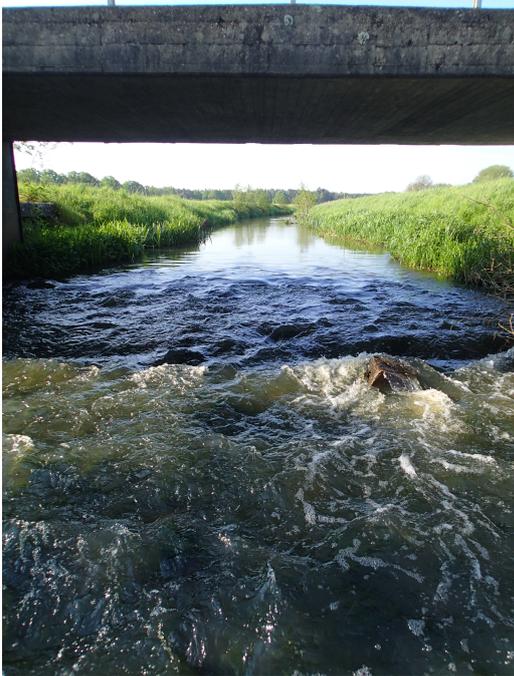
2.2. Probennahme und -aufbereitung

Im Folgenden wird darauf eingegangen, unter welchen Bedingungen die Probenahmen stattgefunden haben und wie diese für eine Gamma-Detektion aufbereitet wurden.

Aus dem Trinkwassergewinnungsgebiet Fuhrberger Feld stammen Proben aus fließenden Oberflächengewässern (Wietze und Wulbeck; Abb. 2.2(a)) und stehenden Oberflächengewässern (Meitzer Teich; Abb. 2.2(c)), Grundwasserproben (Pegelbrunnen und Schwengelpumpe; Abb. 2.2(b)) aus unterschiedlichen Tiefen, sowie Roh- und Reinwasserproben aus dem Wasserwerk Fuhrberg. Zudem wurde Regenwasser auf dem Gelände des Wasserwerks Fuhrberg gesammelt, wobei die Sammelzeit in der 2. Junihälfte sowie der 1. Julihälfte jeweils 14 Tage betrug. Eine detaillierte Kartenübersicht über die Orte der Probenentnahme ist in Abbildung 2.3 dargestellt. Aus dem Harz stammen Proben der Sösetalsperre (Abb. 2.2(d)). Die genauen Daten der jeweiligen Proben befinden sich in Tabelle A.2 im Anhang. Für alle Proben wurde, sofern in Tabelle A.2 nicht anders beschrieben, ein Volumen von etwa 80 Litern entnommen. Die Proben des Meitzer Teichs und der Sösetalsperre wurden einige Meter vom Ufer entfernt bei circa 1 m Wassertiefe aus einer Tiefe von 30-50 cm entnommen. Die Fließgewässer Wietze und Wulbeck wurden mittig im Flusslauf beprobt und die Proben aus dem Ablauf der Talsperre sowie des Wasserwerkes sind direkt aus der entsprechenden Leitung entnommen worden. Nach der Entnahme sind alle Proben mit 1 ml konzentrierter Salpetersäure pro Liter versetzt worden, um Mikroorganismen abzutöten bzw. mikrobiologische Einwirkungen während der Lagerzeit zu minimieren.

In der Aufarbeitung wurden die Proben zunächst filtriert und anschließend mehrschrittig zu einer Salzkruste eingedampft. Die Einengung war erforderlich, um angesichts der geringen zu erwartenden Radionuklidkonzentrationen eine zur gamma-spektrometrischen Messung erforderliche Aufkonzentrierung zu erreichen. Die Probenvolumen wurden während des Einengens geteilt, wobei der zweite Teil für andere Untersuchungen (Sr-90, Pu) genutzt wird. Die zurückgebliebene Salzkruste, die circa 40 l der Wasserprobe entspricht, wurde in eine Petrischale aus Polystyrol gefüllt und diese mit Montagekleber gasdicht verschlossen. Zuletzt wurde die Probe in eine Plastikfolie eingeschweißt. Neben dem Schutz des Detektors vor Kontaminationen dient dies der Radondichtigkeit des Probengefäßes, um Gleichgewichtseinstellungen auch über Radon hinaus zu gewährleisten. Bei vier Proben war die Salzmasse so gering, dass diese direkt auf einem Filterpapier eingeeengt werden konnte, das anschließend durch Laminieren versiegelt wurde.

2. Herkunft und Entnahme der Proben



(a) Wietze



(b) Schwengelpumpe



(c) Meitzer Teich



(d) Sösetalsperre

Abbildung 2.2.: Verschiedene Gewässer und Orte, an denen Wasserproben für das Projekt Transaqua entnommen wurden

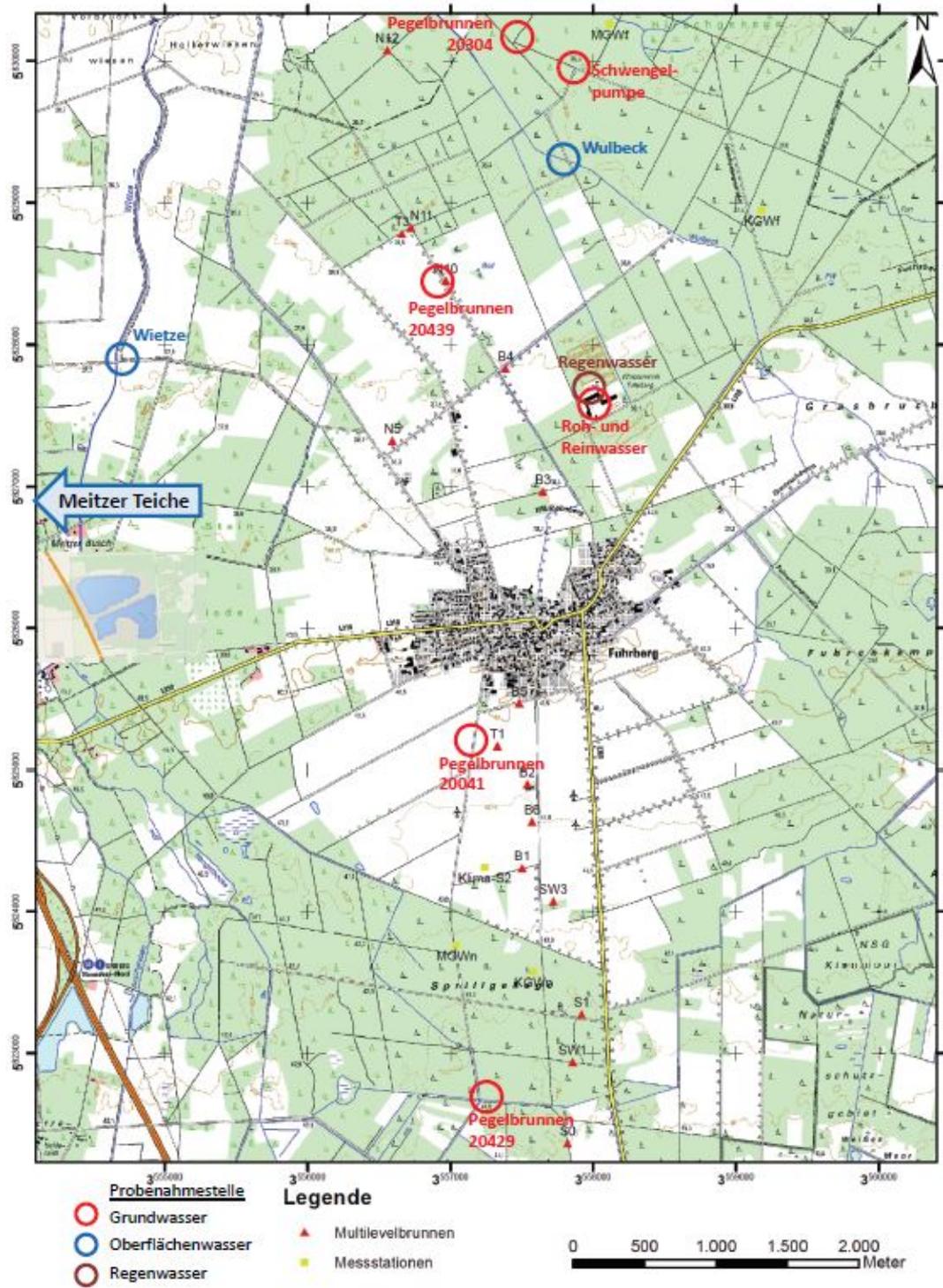


Abbildung 2.3.: Karte des Fuhrberger Felds mit den genauen Orte der einzelnen Probenahmen

Bei den grünen Flächen handelt es sich um Waldgebiet, die weißen Flächen stellen landwirtschaftliche Nutzflächen dar. Die Karte wurde von der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe zur Verfügung gestellt und modifiziert.

3. Aktivitäten, natürliche Zerfallsreihen und anthropogene Radionuklide

Im folgenden Kapitel werden die Eigenschaften des radioaktiven Zerfalls erklärt und radioaktive Gleichgewichte kurz beschrieben. Außerdem wird auf die wesentlichen in dieser Arbeit betrachteten Radionuklide eingegangen.

3.1. Radionuklide

Als Nuklid wird eine Atomart bezeichnet, die den gleichen Kern hat, also die dieselbe Anzahl von Protonen und Neutronen [MK02]. Als Radionuklide werden instabile Atomkerne bezeichnet. Es existieren derzeit etwa 3000 bekannte Isotope, von denen nur circa 300 stabil sind [MPDS12]. Instabile Atomkerne können sich unter Abgabe von Energie in Form ionisierender Teilchen- oder elektromagnetischer Strahlung in andere stabile oder instabile Nuklide umwandeln.

Es werden natürliche und künstliche Radionuklide unterschieden. Die natürlichen Radionuklide werden dabei je nach Herkunft in primordial, radiogen oder kosmogen unterschieden (siehe A.1.1) [Taw12]. Das Vorkommen anthropogener Radionuklide ist maßgeblich durch den Menschen bestimmt, das heißt, diese Nuklide sind überwiegend künstlich erzeugt. Anthropogene Radionuklide entstehen in Folge von kerntechnischen Anwendungen wie Kernwaffentests und Kernreaktoren aber auch durch medizinische Anwendungen und gelangen hierbei sowie durch Reaktorunfälle wie in Tschernobyl und Fukushima in die Umwelt. [Vol12]

3.2. Aktivität und Halbwertszeit

Der radioaktive Zerfall folgt statistischen Regeln und lässt sich daher mathematisch durch das Zerfallsgesetz wie in [MK02] und [Dem14] beschreiben. Dabei können allerdings keine

3. Aktivitäten, natürliche Zerfallsreihen und anthropogene Radionuklide

exakten Vorhersagen über den Zeitpunkt des Zerfalls eines Radionuklids, sondern nur Aussagen über ein Ensemble mithilfe der **Zerfallswahrscheinlichkeit** λ getroffen werden. λ ist eine wohl definierte Konstante und ergibt zusammen mit der **Anzahl N instabiler Teilchen** die **Aktivität A**:

$$A = \lambda \cdot N = -\frac{dN}{dt}. \quad (3.1)$$

Die Aktivität beschreibt die Anzahl der Zerfälle pro Zeiteinheit, auch Zerfallsrate genannt. Diese wird in der Einheit Becquerel angegeben:

$$1 \text{ Becquerel} = 1 \text{ Bq} = 1 \text{ Zerfall/s}. \quad (3.2)$$

Durch die Integration der Formel 3.1 ergibt sich für die Anzahl instabiler Teilchen:

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda t}. \quad (3.3)$$

Für die Aktivität zum Zeitpunkt t , wenn N_0 die Anzahl der instabilen Teilchen zum Zeitpunkt $t = 0$ ist, ergibt sich folglich:

$$A(t) = -\lambda \cdot N_0 \cdot e^{-\lambda t} = A_0 \cdot e^{-\lambda t}. \quad (3.4)$$

Die Zeit, bis N sich halbiert, wird als **Halbwertszeit** $t_{1/2}$ bezeichnet. Durch Einsetzen von $N = N_0/2$ und $t = t_{1/2}$ in Formel 3.3 ergibt sich:

$$\begin{aligned} \frac{N_0}{2} &= N_0 \cdot e^{-\lambda t_{1/2}} \\ \Leftrightarrow \frac{1}{2} &= e^{-\lambda t_{1/2}} \\ \Leftrightarrow \ln\left(\frac{1}{2}\right) &= -\lambda \cdot t_{1/2} \\ \Leftrightarrow t_{1/2} &= \frac{\ln 2}{\lambda}. \end{aligned} \quad (3.5)$$

3.3. Die Bedeutung radioaktiver Gleichgewichte für die Analyse

Zerfällt ein Radionuklid in ein anderes Nuklid, das ebenfalls instabil ist, kann sich unter bestimmten Bedingungen ein konstantes Aktivitätsverhältnis zwischen beiden Nukliden

3.3. Radioaktive Gleichgewichte

ausbilden. Dieser Fall wird als radioaktives Gleichgewicht bezeichnet. Mathematisch lassen sich die Aktivitäten des Mutter- und Tochternuklids wie folgt beschreiben:

Mutternuklid(N_1) \rightarrow Tochternuklid(N_2)

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 \cdot N_1 \quad (3.6)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = -\lambda_2 \cdot N_2 + \lambda_1 \cdot N_1. \quad (3.7)$$

Wird diese Differentialgleichung durch Integration unter Beachtung der Randbedingung, dass zum Zeitpunkt $t = 0$ noch keine Tochternuklide ($N_2 = 0$) gebildet wurden, gelöst, so ergibt sich:

$$\begin{aligned} N_2(t) &= \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_1(0)(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \\ &= \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_1(0) \cdot e^{-\lambda_1 t}(1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}) \\ &= \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_1(t)(1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}). \end{aligned} \quad (3.8)$$

Damit ein radioaktives Gleichgewicht vorliegt, muss das Verhältnis der Aktivitäten beider Nuklide konstant sein. Dies ist gleichbedeutend mit $\frac{N_1}{N_2} = const.$, was der Fall ist, wenn in Gleichung 3.8 der Term $e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}$ für $t \rightarrow \infty$ gegen Null geht. Dies führt zu:

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_1(t). \quad (3.9)$$

Das Verhältnis $\frac{N_1}{N_2} = const.$ ist folglich abhängig von den Zerfallskonstanten der Nuklide, somit von deren Halbwertszeit. Je nachdem in welcher Beziehung λ_1 und λ_2 zueinander stehen, können drei Fälle unterschieden werden:

1. Säkuläres Gleichgewicht
2. Transientes Gleichgewicht (A.1.2)
3. Kein Gleichgewicht. (A.1.2)

Für diese Arbeit ist lediglich ersteres für die Auswertung von Bedeutung. Ein säkuläres Gleichgewicht entsteht, wenn die Halbwertszeit des Mutternuklids sehr viel größer als die des Tochternuklids ist. Für die Zerfallskonstanten gilt daher $\lambda_1 \ll \lambda_2$ und somit

3. Aktivitäten, natürliche Zerfallsreihen und anthropogene Radionuklide

$\lambda_2 - \lambda_1 \sim \lambda_2$. Somit ergibt sich für Gleichung 3.8 der folgende Ausdruck:

$$\begin{aligned} N_2(t) &= \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \cdot N_1(t)(1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}) \\ \lambda_2 N_2(t) &= \lambda_1 N_1(1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}) \\ A_2 &= A_1(1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}). \end{aligned} \quad (3.10)$$

Für $t \rightarrow \infty$ gilt Gleichung 3.9, wodurch sich Gleichung 3.10 zu

$$A_2 = A_1 \quad (3.11)$$

$$\frac{A_2}{A_1} = 1 \quad (3.12)$$

umformen lässt. Für ein säkulares Gleichgewicht ist demnach die Aktivität des Mutternuklids nach einer bestimmten Zeit gleich der Aktivität des Tochternuklids. Die Zeit, die benötigt wird um den Gleichgewichtszustand zu erreichen, ist ausschließlich von der Halbwertszeit des Tochternuklids abhängig. Aus Gleichung 3.10 können wir unter der Umformung

$$\frac{A_2}{A_1} = (1 - e^{-\lambda_2 t})(1 - e^{-\frac{\ln 2}{t_{\frac{1}{2}, 2}} t}) \quad (3.13)$$

verschiedene Aktivitätsverhältnisse berechnen. Bereits nach $t = 10t_{\frac{1}{2}, 2}$ beträgt das Verhältnis $\frac{A_2}{A_1} = 99,9\%$. Die Berechnungen wurden [Taw12] und [Dem14] entnommen.

3.4. Natürliche Zerfallsreihen

Zur Zeit der Entstehung der Erde existierte eine große Anzahl an Radionukliden. Die besonders langlebigen Radionuklide, die aufgrund ihrer enormen Halbwertszeit von $10^8 - 10^{16}$ Jahren noch heute natürlich auf der Erde vorkommen, werden als primordial bezeichnet. Die drei schwersten in wesentlichen Mengen vorkommenden primordialen Atomkerne bilden den Ursprung von jeweils einer Zerfallsreihe. Diese Nuklide sind Uran-238, Uran-235 und Thorium-232. Alle Zerfallsreihen enden mit einem stabilen Blei-Isotop, welches die magische Protonenzahl $Z = 82$ besitzt. Die Nuklide, die während einer Zerfallsreihe entstehen und ebenfalls instabil sind, werden als radiogene Radionuklide bezeichnet und kommen in der Umwelt vor. [Sto03] [MK02]

Natururan kommt vor allem in Graniten, aber auch in silizium- und phosphathaltigen Gesteinen sowie in Schiefen vor. Uran-238 und Uran-235 haben einen Anteil von 99,275% und 0,72% am natürlich vorkommenden Uran. Aufgrund der kürzeren Halbwertszeit des

3.4. Natürliche Zerfallsreihen

Uran-235 beträgt das natürliche Aktivitätsverhältnis $\frac{A(^{238}\text{U})}{A(^{235}\text{U})} = 21,7$ [Taw12]. In der Oxidationsstufe (VI), die durch das chemische Milieu bedingt wird, ist Uran relativ leicht löslich. Daher ist es je nach Herkunft möglich, Uran und Folgeprodukte der beiden Zerfallsreihen (siehe Abbildung 3.1) in Umwelt-, bzw. speziell Wasserproben nachzuweisen. Thorium ist dagegen in Wasser nur schwer löslich. [Vah04]

N-Z	Z	81	82	83	84	85	86	87	88	89	90	91	92	
54	A	Uraniumreihe ($A = 4n + 2$)										Th 234 24,1 d	←	U 238 4,5·10 ⁹ a
52												Pa 234m 1,2 min		
50		Pb 214 26,8 min	←	Po 218 3,05 min	←	Rn 222 3,83 d	←	Ra 226 1600 a	←	Th 230 8·10 ⁴ a	←	U 234 2,5·10 ⁵ a		
48			Bi 214 19,8 min		218		222		226		230			
46		Pb 210 22,3 a	←	Po 214 164 μs					α		β			
44			Bi 210 5,0 d		214									
42		Pb 206 stabil	←	Po 210 138,4 d										
51		Actiniumreihe ($A = 4n + 3$)										Th 231 25,5 h	←	U 235 7·10 ⁸ a
49										Ac 227 22 a	←	Pa 231 3,3·10 ⁴ a		
47		Pb 211 36,1 min	←	Po 215 1,8 ms	←	Rn 219 3,9 s	←	Ra 223 11,4 d	←	Th 227 18,7 d	←	231		
45		Tl 207 4,8 min	←	Bi 211 2,2 min		215		219		223		227		
43		Pb 207 stabil		211										
52		Thoriumreihe ($A = 4n$)										Ra 228 5,75 a	←	Th 232 1,4·10 ¹⁰ a
50										Ac 228 6,13 h				
48		Pb 212 10,6 h	←	Po 216 0,15 s	←	Rn 220 55,6 s	←	Ra 224 3,64 d	←	Th 228 1,91 a	←	232		
46		Tl 208 3,1 min	36 %	Bi 212 60,6 min	64 %	216		220		224		228		
44		Pb 208 stabil	←	Po 212 0,3 μs										

Abbildung 3.1.: Die drei natürlichen Zerfallsreihen der schweren primordialen Radionuklide mit ihren Folgeprodukten [Sto03]

3.5. Betrachtete Radionuklide

Folgend werden die Radionuklide Caesium-137 und Kalium-40 genauer vorgestellt, da beide Nuklide ein ähnliches chemisches Verhalten aufweisen und Caesium-137 für die Analyse im Rahmen des Projekts Transaqua von besonderer Bedeutung ist.

3.5.1. Cs-137

Caesium-137 (folgend Cs-137) entsteht bei der induzierten Kernspaltung von Uran-235 mit einer Spaltausbeute von etwa 6,2%, zum Beispiel bei Kernwaffentests oder in Kernreaktoren [FM09].

Da Cs-137 praktisch kein natürliches Vorkommen hat und vergleichsweise einfach messbar ist, gehört es zu den wichtigsten anthropogenen Radionukliden. Cs-137 gehört bei Reaktorunfällen zu den leicht flüchtigen Radionukliden, sodass es sich über die Luft weiträumig verteilen kann [fkE17]. Die Halbwertszeit von Cs-137 beträgt circa 30 Jahre, wodurch die Dauer der Umweltkontamination einige Jahrhunderte beträgt. Caesium verhält sich chemisch ähnlich wie Kalium. Daher wird es im Boden von Pflanzen resorbiert und kann unter anderem so in den menschlichen Organismus gelangen. Im Organismus lagert es sich aufgrund des kaliumähnlichen Verhaltens innerhalb von 24 Stunden nach der Aufnahme in den Muskeln und Zellen des ganzen Körpers an. Es verbleibt mit einer biologischen Halbwertszeit von 110/65 Tagen (Männer/Frauen) im Körper, bevor es überwiegend über die Nieren ausgeschieden wird. Aufgrund dieser biologischen Faktoren und der physikalischen Eigenschaften wird Cs-137 mit einer hohen Radiotoxizität eingestuft. [Vol12]

Die Abbildung 3.2 zeigt das Zerfallsschema des Cs-137. Das Isotop zerfällt ausschließlich über einen Betazerfall mit einer Halbwertszeit von 30,17 Jahren. Dabei wandelt sich das Nuklid mit einer Wahrscheinlichkeit von 6% in den Grundzustand und mit einer Wahrscheinlichkeit von 94% in den angeregten Zustand des Barium-137 um. Das angeregte Bariumisotop sendet anschließend mit einer Halbwertszeit von 2,55 Minuten ein Gammaquant der charakteristischen Energie von 661,66keV aus und geht in dessen Grundzustand über. Die Emissionswahrscheinlichkeit für das Gammaquant beträgt 85,1%. Cs-137 kann über das Tochternuklid aufgrund der hohen Wahrscheinlichkeit für die Aussendung eines Gammaquants sehr gut gamma-spektrometrisch nachgewiesen werden. Dazu werden die Eigenschaften eines säkulären Gleichgewichts genutzt, auf welches in Kapitel 3.3 näher eingegangen wurde. [Taw12]

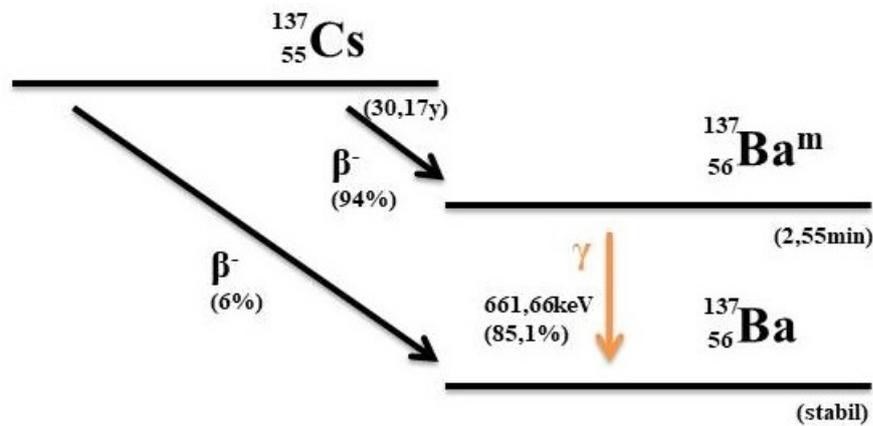


Abbildung 3.2.: Zerfallsschema Cs-137

3.5.2. K-40

Kalium ist ein Element, das 2,4 Gewichtsprozent Anteil an der Erdkruste hat und daher zu den zehn häufigsten Elementen gehört, die über 99% der Erdkrustenmasse darstellen. Folglich kommt es ubiquitär vor. Es setzt sich dabei natürlich aus drei Isotopen zusammen, ^{39}K (93,2581%), ^{40}K (0,0117%) und ^{41}K (6,7302%). Dabei ist Kalium-40 ein primordiales Radionuklid mit einer Halbwertszeit von $1,277 \cdot 10^9$ Jahren. Die anderen beiden Isotope sind dagegen stabil. Kalium ist ein essentielles Element für alle bekannten Lebewesen und hat einen natürlichen Anteil von 0,2% am menschlichen Körpergewicht, da es unverzichtbar für Muskel- und Nerventätigkeiten ist. Bei überschüssiger Aufnahme von Kalium scheidet der Organismus dieses wieder aus, wodurch der Anteil an Kalium im Körper konstant bleibt. [Vol12]

In Abbildung 3.3 ist das Zerfallsschema des Kalium-40-Isotops dargestellt. Kalium-40 zerfällt zu 89% über einen β^- -Zerfall in das stabile ^{40}Ca . Mit einer Wahrscheinlichkeit von 11% macht es jedoch einen Elektroneneinfang und wandelt sich in ^{40m}Ar um, das unter Emission eines Gammaquants in den stabilen Grundzustand ^{40}Ar übergeht. [Vol12]

Kalium-40 ist daher gamma-spektrometrisch sehr gut nachweisbar. Kalium gehört zu den Alkalimetallen, deren Verbindungen in der Regel gut löslich sind. Der überwiegende Anteil des Kaliums ist in der Natur in silicatischen Verbindungen, insbesondere in Tonmineralen gebunden.

3. Aktivitäten, natürliche Zerfallsreihen und anthropogene Radionuklide

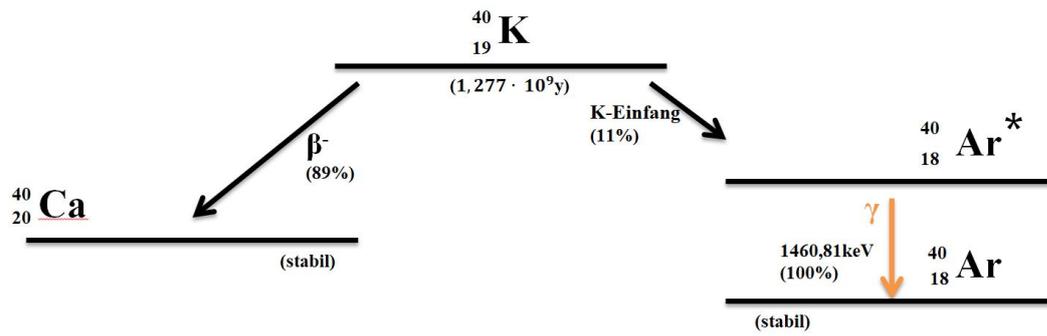


Abbildung 3.3.: Zerfallsschema K-40

4. Grundlagen der Gamma-Spektrometrie

Für gamma-spektrometrische Untersuchungen steht der Gammazerfall im Fokus. Die Umwandlungsprozesse von Radionukliden, oft als radioaktiver Zerfall bezeichnet, können in verschiedene Kategorien eingeteilt werden. Dabei wird zwischen Spaltprozessen und der Emission von Teilchen oder elektromagnetischer Strahlung differenziert. Die Emission von hochenergetischer elektromagnetischer Strahlung eines Nuklids wird Gammazerfall genannt. Hierbei bleibt die Neutronen- und Protonenzahl des Radionuklids konstant. Für einen Gammazerfall muss sich der Kern in einem angeregten Zustand befinden, dies kann als Folge eines vorangegangenen radioaktiven Zerfalls geschehen. Der Kern im angeregten Zustand kann unter Emission eines oder mehrerer für das Radionuklid charakteristischen Gammaquanten in den Grundzustand übergehen.

In diesem Kapitel wird aufgeführt, welche physikalischen Prinzipien die Grundlage für die Gamma-Spektrometrie bilden. Außerdem wird die Wahl des Detektors sowie dessen Eigenschaften und Kalibrierung erläutert.

4.1. Wechselwirkungsarten von Gammaquanten mit Materie

Um die Funktion des Gamma-Detektors erklären zu können, muss zuerst erläutert werden, wie Gammastrahlung mit Materie wechselwirkt. Ein Gammaquant kann auf drei verschiedene Arten Energie an Materie übertragen.

Photoeffekt

Bei dem photoelektrischen Effekt wechselwirkt elektromagnetische Strahlung mit dem gebundenen Elektron eines Atoms. Dabei gibt das Photon die gesamte Energie an das Elektron ab, welches aus der Atomhülle gelöst wird und sich als freies Photoelektron mit

4. Grundlagen der Gamma-Spektrometrie

einer kinetischen Energie E_{e^-} von

$$E_{e^-} = h\nu - E_b \quad (4.1)$$

bewegt. E_b entspricht hierbei der Bindungsenergie, die vom Photon der Energie $h\nu$ aufgebracht werden muss, um das Elektron aus der Hülle des Atoms zu lösen. Gammastrahlen wechselwirken dabei überwiegend mit Elektronen der K-Schale. Die entstandene Lücke in der K-Schale wird von einem gebundenen Elektron höherer Energie oder von einem freien Elektron aufgefüllt. Die Energiedifferenz der Zustände des Elektrons wird dabei in Form von Röntgenstrahlung frei und kann weitere Atome ionisieren.

Die Wahrscheinlichkeit τ für den photoelektrischen Effekt kann näherungsweise in Abhängigkeit der Kernladungszahl Z angegeben werden.

$$\tau \cong \text{const.} \times \frac{Z^n}{E_\gamma^{3,5}} \quad (4.2)$$

Dabei variiert n zwischen 4 und 5, abhängig von der Energie E_γ der Strahlung. Aus Formel 4.2 ergeben sich zwei wesentliche Eigenschaften:

Die Wahrscheinlichkeit für das Eintreten eines Photoeffekts...

1. ...steigt mit zunehmender Kernladungszahl des Absorbermaterials. Dies legt nahe, dass das Detektormaterial nach Möglichkeit eine hohe Kernladungszahl besitzen sollte.
2. ...nimmt mit zunehmender Energie der Strahlung stark ab. [Kno10]

Comptoneffekt

Im Gegensatz zum Photoeffekt überträgt das Photon beim Comptoneffekt nur einen Teil seiner Energie auf ein Hüllenelektron. Bei dieser elastischen Streuung ändert das Photon die Richtung um den Winkel θ bezogen auf die ursprüngliche Richtung. Der Winkel nimmt mit steigendem Energieübertrag zu, wobei der maximale Energieübertrag eine Richtungsänderung um π bedeutet. Die Impuls- und Energieerhaltung liefern für die verbleibende Energie $E_{\gamma'}$

$$E_{\gamma'} = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0c^2}(1 - \cos\theta)} \quad (4.3)$$

mit $E_\gamma = h\nu$ und der Ruheenergie m_0c^2 des Elektrons. Die Energie E_e des Elektrons errechnet sich daher wie folgt,

$$E_e = E_\gamma - E_{\gamma'} \quad (4.4)$$

mit der maximalen Energie $E_{e,max}$

$$E_{e,max}(\theta = \pi) = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{2 \cdot E_\gamma}{m_0 c^2}}. \quad (4.5)$$

Die Wahrscheinlichkeit für eine Comptonstreuung nimmt mit der Anzahl der Hüllenelektronen der Atome des Absorbermaterials zu. Daher nimmt diese linear mit der Kernladungszahl Z zu. [Vah04][Kno10]

Paarbildung

Beim Paarbildungseffekt verschwindet das Photon und es entsteht ein Elektron-Positron Paar. Sobald der Gammaquant die zweifache Ruhemasse des Elektrons von 1022 keV besitzt, ist der Effekt der Paarbildung energetisch betrachtet möglich. Praktisch ist der Paarbildungseffekt erst ab einer Gammaenergie von etwa 10 MeV von wesentlicher Bedeutung. Die Paarbildung kann aufgrund der Impuls- und Energieerhaltung nur im Coulombfeld des Kerns stattfinden. Wenn die Energie des Gammaquants $E_\gamma > 2m_0c^2$ übersteigt, wird die restliche Energie in Form von kinetischer Energie unter dem Elektron-Positron gleich aufgeteilt. Nachdem das Positron im Absorbermaterial abgebremst wurde, annihiliert dieses mit einem Elektron in zwei Photonen der Energie 511 keV. Diese können im Spektrum einen Annihilationspeak bei der Energie von 511 keV verursachen (siehe A.1). Die Wahrscheinlichkeit der Paarbildung wird näherungsweise proportional zum Quadrat der Kernladungszahl Z^2 angegeben. [Kno10]

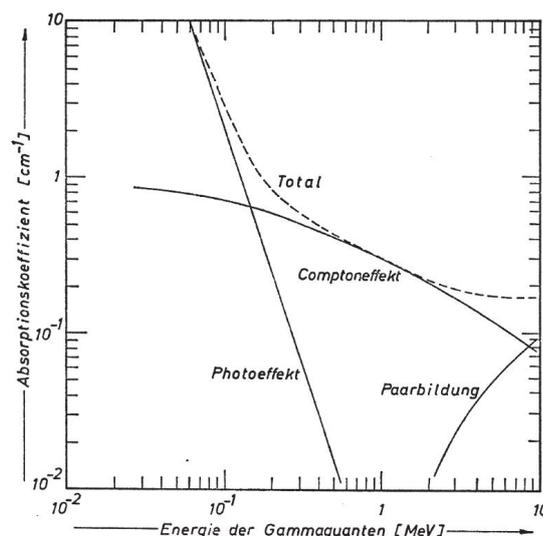


Abbildung 4.1.: **Absorptionskoeffizienten** für verschiedene Wechselwirkungsarten in Germanium in Abhängigkeit von der Energie der Gammaquanten. [Bü71]

4. Grundlagen der Gamma-Spektrometrie

Die Abbildung 4.1 vermittelt einen Eindruck über die Wahrscheinlichkeit der auftretenden Wechselwirkungen in Abhängigkeit von der Energie der Photonen. Dabei bezieht sich die Abbildung auf die Kernladungszahl von Germanium, was in den gamma-spektrometrischen Untersuchungen dieser Arbeit als Detektorkristall verwendet wird. Der Photoeffekt dominiert für Energien bis zu etwa 100 keV. Im Energiebereich von 100 keV bis zu nahezu 10 MeV überwiegt der Comptoneffekt. Die Paarbildung findet ab einer Gamma-Energie von 2 MeV vermehrt statt, allerdings ist diese erst ab circa 10 MeV von dominierender Bedeutung. Für die gamma-spektrometrischen Untersuchungen, bei denen sich die Energien der Gammaquanten im Bereich von 40 keV bis zu knapp 2 MeV bewegen, ist folglich der Comptoneffekt von entscheidender Relevanz.

4.2. Aufbau und Funktion eines Germanium-Detektors

Der Reinst-Germanium-Kristall weist eine Reinheit von weniger als 10^9 Fremdatomen pro Kubikzentimeter auf und stellt die Grundlage für die gamma-spektrometrischen Untersuchungen dar. Mit einer verhältnismäßig hohen Ordnungszahl von $Z = 32$ eignet sich das Element aufgrund der Gleichung 4.2 und der Proportionalität der Comptoneffektwahrscheinlichkeit zu Z besonders für die Detektion von Gammaquanten. Germanium-Kristalle gehören der Gruppe der Halbleiter an. Im Gegensatz zu Isolatoren ist die Energiedifferenz zwischen Valenz- und Leitungsband nur sehr gering. Dies führt bereits bei Raumtemperatur durch thermische Anregungen der Valenzelektronen zu freien Ladungsträgern im Leitungsband. Um dieses "Rauschen" zu minimieren, wird der Kristall mit flüssigem Stickstoff auf eine Temperatur von 77 K herunter gekühlt. [Kno10]

Für die Detektion von Photonen ist eine ladungsträgerarme Zone notwendig, die durch Anlegen einer Hochspannung in Sperrrichtung erzeugt wird. Tritt ionisierende Strahlung in die Zone ein, werden Elektronen-Loch-Paare erzeugt, die durch die angelegte Spannung einen kurzzeitigen elektrischen Strom erzeugen, der verstärkt und detektiert wird. Die Anzahl n der Elektronen-Loch-Paare ist hierbei proportional zur absorbierten Energie E_{abs} und bei vollständiger Absorption des Gammaquants im Kristall daher auch zu dessen Energie E_γ . [Taw12]

$$n = \frac{E_{abs}}{\epsilon} \propto E_\gamma \quad (4.6)$$

Dabei entspricht ϵ der Energie, die zur Erzeugung eines Elektronen-Loch-Paares notwendig ist. Für Germanium beträgt diese Energie 2,96 eV. Dies führt bei Gammaenergien zwischen 45 keV und 2 MeV zu einer Anzahl von erzeugten Ladungsträgerpaaren in der Größenordnung $10^4 - 10^5$. Diese enorme Anzahl ermöglicht eine sehr scharfe Energieauflösung,

sodass sich benachbarte Peaks im Spektrum getrennt voneinander analysieren lassen. Je nachdem, ob die verbliebenen Fremdatome im Germanium-Kristall Akzeptoren oder Donatoren sind, also zusätzliche positive (Löcher) oder negative Ladungsträger (Elektronen) einbringen, wird der Reinst-Germaniumdetektor als p-Typ oder n-Typ bezeichnet. N-Typ-Kristalle weisen eine geringere Totschicht (für Strahlung unempfindliche nicht ladungsträgerarme Zone) gegenüber p-Typ-Kristallen auf und sind daher für niederenergetische Photonen (< 100 keV) empfindlicher. [Kno10] [VS11]

4.2.1. Auswahl und Eigenschaften des verwendeten Detektors

Die Messungen dieser Arbeit wurden am Detektor 4 durchgeführt. Der Detektor besitzt die in Tabelle 4.1 gezeigten Merkmale. Es handelt sich hierbei um einen n-Typ koaxial Kristall mit geschlossenem Ende. Wie in Kapitel 4.2 beschrieben, sind n-Typ-Kristalle empfindlicher für niederenergetische Quanten. Durch das Carbon-Epoxy-Fenster, welches für niederenergetische Quanten durchlässiger als ein übliches Aluminiumgehäuse ist, kann diese Eigenschaft optimal genutzt werden. Da die zu untersuchenden Radionuklide teilweise charakteristische Gammaenergien von < 50 keV aufweisen (Bsp. Pb-210 mit der Gammaenergie 46,54 keV) wurde dieser Detektor ausgewählt. Des Weiteren haben koaxiale Kristalle ein deutlich größeres aktives Volumen (ladungsträgerarme Zone) als planare Kristalle und steigern dadurch die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit mit Gammaquanten.

Tabelle 4.1.: **Eigenschaften des verwendeten Germanium-Detektors**

Typ	n ; koaxial
Firma	Canberra
Serien-Nr.	b 95691
Modell-Nr.	GR2818
Betriebsspannung	(-)5000 V
Kristall	
Durchmesser	53 mm
Höhe	59,5 mm
Fenster (Durchmesser)	Carbon-Epoxy (5 mm)
Auflösung	(gemessen am 03.04.1997)
rel. Efficiency [%]	28,3
Peak-to-Compton	62,9:1

4.3. Detektorkalibrierung

Die im Germaniumkristall detektierten Signale werden mittels eines Vielkanalanalysators in Abhängigkeit ihrer Energie auf verschiedene Kanäle aufgeteilt. Damit dem Signal eines detektierten Photons die entsprechende Energie zugeordnet werden kann, wird in dem Computerprogramm GENIE2000 eine Energiekalibrierung durchgeführt. Hierbei werden bekannte Radionuklide auf dem Detektor gemessen. Um eine Extrapolation zu vermeiden, werden sowohl niederenergetische ($< 60\text{keV}$) als auch hochenergetische ($\approx 1800\text{ keV}$) Strahlung emittierende Radionuklide auf dem Detektor gemessen. Anschließend werden den Kanälen der Photopeaks (siehe A.1.2) die bekannten Energien der Radionuklide zugeordnet. [Taw12]

Der in dieser Arbeit verwendete Detektor war bereits Energie-kalibriert, sodass lediglich mit Hilfe einer Multinuklidlösung die Lage der Photopeaks im Spektrum überprüft wurde.

4.4. Grundlagen der Auswertung

Der Gammadetektor liefert ein Spektrum mit Peaks, denen anschließend Radionuklide aufgrund ihrer charakteristischen Emissionsenergie zugeordnet werden können. Um aus diesem Spektrum die Aktivität der detektierten Radionuklide bestimmen zu können, sind verschiedene Operationen erforderlich. In den Kapiteln 4.4.1-4.4.4 wird daher erläutert, wie die Effizienz der Messanordnung bestimmt wird, wie Aktivitäten aus den Impulszahlen des Spektrums berechnet werden und wie die Ergebnisse beurteilt werden.

4.4.1. Efficiencykalibrierung

Der Reinst-Germanium-Detektor registriert nicht jedes von einem Radionuklid der Probe emittierte Gammaquant. Dies geschieht zum einen aufgrund der Geometrie der Messanordnung. Die Probe emittiert Photonen in alle Raumrichtungen, der Detektorkristall deckt allerdings nur einen begrenzten Abschnitt hiervon ab. Zum anderen wechselwirkt nicht jedes Photon, das den Kristall durchquert, mit diesem, sodass weitere Verluste in der Detektion auftreten. Die Effizienz bzw. (*Photopeak-)*Efficiency ε der Messanordnung ergibt sich daher aus dem Quotienten der detektierten r_{det} und emittierten Gammaquanten r_{em}

$$\varepsilon = \frac{r_{det}}{r_{em}} \quad (4.7)$$

Die Efficiency unterscheidet sich in Abhängigkeit von der Geometrie und Selbstabsorption bei jeder einzelnen Probe und ist ebenfalls vom Detektor und den Eigenschaften des Kristalls sowie der Energie des Photons abhängig. Für die Messungen der Wasserproben wurden Salzkrusten in Petrischalen und auf Filterpapier gemessen. Zur Bestimmung der Efficiency der Petrischalenproben wurde ein Standardfilter mit dem Durchmesser der Petrischale hergestellt. Dieser wurde mit einer Multinuklidlösung (siehe Tabelle A.1) versetzt und sowohl oberhalb als auch unterhalb der Probe gemessen. Die Aktivität der Nuklide im Standard ist zu einem Referenzdatum bekannt und wurde mit Hilfe der Formel 3.4 zum Zeitpunkt der Messung bestimmt. Mit dieser und der Formel 4.7 lässt sich die Efficiency für die Nuklide oberhalb ε_{ob} und unterhalb ε_{un} der Probe berechnen. Da Gammastrahlung in Materie exponentiell abgeschwächt wird, kann die Efficiency durch den logarithmischen Mittelwert für jedes Radionuklid im Standard berechnet werden [Faß16]. Die Efficiency wurde für jede Probe einzeln bestimmt.

$$\varepsilon = \frac{\varepsilon_{ob} - \varepsilon_{un}}{\ln(\varepsilon_{ob}) - \ln(\varepsilon_{un})} \quad (4.8)$$

Für die Proben auf einem Filter wurde ebenfalls ein Standardfilter mit der Multinuklidlösung hergestellt und auf dem Detektor gemessen. Anschließend wurde die Efficiency der in der Multinuklidlösung enthaltenen Radionuklide berechnet. Aufgrund der geringen Dicke kann die Selbstabsorption bei der Berechnung der Efficiency der Filterproben vernachlässigt werden.

Die Gleichungen 4.7 und 4.8 liefern lediglich die Efficiency für Nuklide des Standards. Da allerdings auch die Aktivitäten von Nukliden, die in der Probe aber nicht im Standard enthalten sind, berechnet werden soll, wird eine Efficiency in Abhängigkeit der Energie $\varepsilon(E)$ der Strahlung benötigt. Die Multinuklidlösung liefert einzelne Efficiency-Werte, die über das gesamte Spektrum von 40 keV bis 1836 keV verteilt sind. Diese Punkte können mit Hilfe der *Jäckel-Westmeier-Funktion* interpoliert werden. [Kam16]

$$\varepsilon(E) = e^{((a_1 + a_2 \cdot \ln(E) + a_3 \cdot \ln^2(E)) \frac{2}{\pi} \cdot \arctan(e^{(a_4 + a_5 \cdot \ln(E) + a_6 \cdot \ln^3(E))}) - 25)} \quad (4.9)$$

Die Jäckel-Westmeier-Funktion 4.9 liefert mittels der Parameter a_1 bis a_6 , die durch Interpolation der Efficiency-Werte mit dem Programm QtiPlot bestimmt wurden, eine Efficiency für jedes Nuklid in Abhängigkeit von der Gammaenergie.

4.4.2. Bestimmung der spezifischen Aktivität

Die spezifischen Aktivitäten der Radionuklide in den Proben werden mittels einer Excel-Arbeitsmappe bestimmt. Diese wurde aus einer vorherigen Arbeit [Kam16] übernommen und um die Efficiency-Berechnungen für die Messgeometrie dieser Arbeit erweitert. Alle folgenden Formeln, die in der Arbeitsmappe zur Bestimmung der spezifischen Aktivität verwendet werden, beruhen auf den Kapiteln 2.4-2.6 von Tawussi [Taw12].

Die Spektren wurden mit der Software Genie2000 ausgewertet. Das Programm liefert, bei manueller Festlegung der Intervallgrenzen, die Bruttocounts n_b in dem Messzeitraum t_b für die Fläche unterhalb eines Peaks, von der automatisch der Compton-Untergrund abgezogen wird.

Ungestörte Linien

Als ungestörte Linie wird ein Peak im Spektrum bezeichnet, der keine Überlappung mit einem benachbarten Peak aufweist und eindeutig einem Nuklid zugeordnet werden kann. Um die spezifische Aktivität dieses Nuklids zu bestimmen, muss zuerst die Nettozählrate r_n ermittelt werden. Hierfür wird von der Bruttozählrate r_b die Nullrate r_0 abgezogen,

$$r_n = r_b - r_0 = \frac{n_b}{t_b} - \frac{n_0}{t_0} \quad (4.10)$$

wobei n_0 die Counts und t_0 die Messzeit der Nullmessung darstellt.

Die Unsicherheit für die Nettozählrate $u(r_n)$ berechnet sich nach der Gaußschen Fehlerfortpflanzung (siehe 4.19) zu:

$$u(r_n) = \sqrt{\frac{u^2(n_b)}{t_b^2} + \frac{u^2(n_0)}{t_0^2}}. \quad (4.11)$$

Die Unsicherheit der Messzeit wird hierbei vernachlässigt. Die Unsicherheiten der Counts n_b und n_0 werden automatisch durch die Software Genie2000 ermittelt.

Um die spezifische Aktivität des Radionuklids zu berechnen, muss zudem berücksichtigt werden, dass das Nuklid über unterschiedliche Pfade zerfallen kann und, wie bereits in 4.4.1 angesprochen, nicht jedes emittierte Photon detektiert wird. Die Aktivität A verhält sich daher antiproportional zur Emissionswahrscheinlichkeit p_γ und Efficiency ε .

$$A = \frac{k_s}{\varepsilon p_\gamma} \cdot r_n \quad (4.12)$$

Der Summationskorrekturfaktor k_s berücksichtigt die Wahrscheinlichkeit, dass zwei Photonen zur gleichen Zeit im Detektor wechselwirken, sodass der detektierte Impuls als Summe der Energien beider Photonen erscheint. Die Werte für k_s in der Arbeitsmappe entsprechen den Werten aus [DS90].

Um die Aktivitäten verschiedener Proben miteinander vergleichen und Rückschlüsse auf das Wasser des Beprobungsgebietes schließen zu können, wird die massenspezifische Aktivität a in $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ermittelt, indem die Aktivität der Probe durch deren Masse m geteilt wird.

$$a = \frac{k_s}{\varepsilon p_\gamma m} \cdot r_n$$

$$= \omega \cdot r_n \tag{4.13}$$

$$\tag{4.14}$$

ω fasst dabei die für das jeweilige Nuklid konstanten Faktoren zusammen. Für die Unsicherheit $u(a)$ gilt:

$$u^2(a) = r_n^2 \cdot (u^2(k_s) + u^2(m) + u^2(\varepsilon) + u^2(p_\gamma)) + \omega^2 \cdot u^2(r_n)$$

$$= r_n^2 \cdot u^2(\omega) + \omega^2 \cdot u^2(r_n). \tag{4.15}$$

Die Unsicherheiten orientieren sich an den vorangegangenen Arbeiten [Kam16]. Für den Summenkorrekturfaktor k_s wurde im Fall $k_s \neq 1$ eine Unsicherheit von 10% angenommen. Die Unsicherheit der Masse wurde mit $u(m) = 0,5$ g bezogen auf die ursprüngliche Wassermenge der Salzkruste gewählt. Da die Efficiency für niedrige Gammaenergien weniger genau bestimmt werden kann, wurde die Unsicherheit in Abhängigkeit von der Energie der Photonen gewählt.

$$E_\gamma < 100 \text{ keV} \rightarrow u(\varepsilon) = 0,10$$

$$100 \text{ keV} < E_\gamma < 200 \text{ keV} \rightarrow u(\varepsilon) = 0,07$$

$$E_\gamma > 200 \text{ keV} \rightarrow u(\varepsilon) = 0,05$$

Gestörte Linien

Wenn sich zwei benachbarte Peaks in einem Spektrum überschneiden, spricht man von einer gestörten Linie. Die Berechnung der spezifischen Aktivität a_c gestaltet sich hierbei

4. Grundlagen der Gamma-Spektrometrie

komplexer, da die Aktivität a' des Störnuklids berücksichtigt werden muss.

$$\begin{aligned}
 a_c &= \omega \cdot \left(\left(\frac{n_b}{t_b} - \frac{n_0}{t_0} \right) - r'_n \right) \\
 &= \omega \cdot \left(\left(\frac{n_b}{t_b} - \frac{n_0}{t_0} \right) - \frac{a'}{\omega'} \right) \\
 &= \omega \cdot \left(\frac{n_b}{t_b} - \frac{n_0}{t_0} \right) - \frac{\omega}{\omega'} \cdot a' \\
 &= a - \frac{\omega}{\omega'} \cdot a'
 \end{aligned} \tag{4.16}$$

Die Unsicherheit des $u(a_c)$ ergibt sich aus folgender Gleichung:

$$u(a_c) = \sqrt{r_n^2 \cdot u^2(\omega) + \omega^2 \cdot u^2(r_n) + u^2\left(\frac{\omega}{\omega'} \cdot a'\right)} \tag{4.17}$$

Allgemein

Die Aktivitäten der Radionuklide, die nicht über die Emission von Photonen zerfallen oder deren Emissionswahrscheinlichkeiten sehr klein sind, können mittels der Aktivität der Tochternuklide bestimmt werden. Dies ist allerdings nur möglich, falls sich Mutter- und Tochternuklid in einem säkulären Gleichgewicht (siehe Kapitel 3.3) befinden.

Für Radionuklide mit mehreren Gammalinien oder mit mehreren Töchtern wurde die Aktivität durch die ungestörte Linie höchster Emissionswahrscheinlichkeit bestimmt. In Tabelle 4.2 ist aufgezeigt, durch welche Gammalinie die spezifische Aktivität des Radionuklids bestimmt wurde und welche Aktivitäten über ein säkulares Gleichgewicht mit der Tochter bestimmt wurden.

Tabelle 4.2.: Gewählte Emissionslinie zur Bestimmung der spez. Aktivität der Nuklide

Radionuklid	Emissionslinie [keV]	Bestimmung durch Gleichgewicht
Cs-137	662	ja (Ba-137m)
K-40	1461	nein
U-238	1001	ja (Pa-234m)
Ra-226	295/609	ja, \bar{x} aus (Pb-214/Bi-214)
Pb210	46,5	nein
Ra-228	911	ja (Ac-228)
Th-228	239	ja (Pb-212)

4.4.3. Messunsicherheiten

Die Ergebnisse der Messungen sollen eine bestmögliche Schätzung des wahren Wertes einer untersuchten Größe wiedergeben. Der wahre Wert einer Messgröße ist grundsätzlich unbekannt. Daher kann ein Ergebnis nur sinnvoll beurteilt werden, wenn die Messunsicherheit zum Messwert angegeben ist. Die Unsicherheit gibt ein Intervall für den wahren Wert einer Messung an, in dem sich dieser mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit befindet.

Liegen für eine Messgröße mehrere voneinander unabhängige Messungen vor, kann der arithmetische Mittelwert \bar{x} als Schätzwert genutzt werden. Dieser ergibt sich bei n Messungen der Größe x zu:

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i. \quad (4.18)$$

Kann eine Messgröße y nur indirekt bestimmt werden, sodass diese sich als Funktion F der Eingangsgrößen x_1, \dots, x_m ergibt,

$$y = F(x_1, \dots, x_m)$$

kann die Unsicherheit $u(y)$ durch die Gaußsche Fehlerfortpflanzung ermittelt werden, falls die Messgrößen x_i voneinander unabhängig sind. [GUM95]

$$u^2(y) = \sum_{i=1}^m \left(\frac{\partial F}{\partial x_i} \right)^2 \cdot u^2(x_i) \quad (4.19)$$

4.4.4. Nachweisgrenzen

Um die Messergebnisse weiterhin auf ihre Aussagekraft zu prüfen, können Erkennungs- und Nachweisgrenzen berechnet werden. Die *Erkennungsgrenze* a^* trifft mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit α eine Aussage darüber, ob ein Nuklid in der Probe vorhanden ist. Diese berechnet sich wie folgt:

$$\begin{aligned} a^* &= k_{1-\alpha} \cdot \bar{u}(0) \\ &= k_{1-\alpha} \cdot \omega \cdot u(r_n) \\ &= k_{1-\alpha} \cdot \omega \cdot \sqrt{\frac{u^2(n(b))}{t_b^2} + \frac{u^2(n(0))}{t_0^2}}. \end{aligned} \quad (4.20)$$

4. Grundlagen der Gamma-Spektrometrie

$\bar{u}(0)$ entspricht dabei der Standardunsicherheit des Messwerts \tilde{a} am Nullpunkt [Taw12]. Für gestörte Linien berechnet sich die Erkennungsgrenze wie folgt:

$$a_c^* = k \cdot \sqrt{\left(\frac{a'}{\omega'}\right)^2 u^2(\omega) + \omega^2 u^2(r_n) + u^2\left(\frac{\omega}{\omega'} a'\right)}. \quad (4.21)$$

Die *Nachweisgrenze* $a^\#$ gibt mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit β einen Wert für die Aktivität an, ab dem ein Nuklid als nachgewiesen betrachtet werden kann. Die Nachweisgrenze berechnet sich zu:

$$\begin{aligned} a^\# &= a^* + k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}(a^\#) \\ &= a^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{\left(\frac{a^\# \cdot u_{rel}(\omega)}{\omega}\right)^2 + \omega^2 u^2(r_n)} \\ &= a^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{\left(\frac{a^\# \cdot u_{rel}(\omega)}{\omega}\right)^2 + \left(\frac{a^*}{k_{1-\alpha}}\right)^2}. \end{aligned} \quad (4.22)$$

Für gestörte Linien gilt:

$$a_c^\# = 2 \cdot \frac{a_c^* + \frac{1}{\omega' \omega} a' k^2 u_{rel}^2(\omega)}{1 - k^2 \left(\frac{u_{rel}(\omega)}{\omega}\right)^2}. \quad (4.23)$$

In der Arbeitsmappe wurde eine Irrtumswahrscheinlichkeit von $\alpha = \beta = 5\%$ angenommen, sodass sich für $k_{1-\alpha} = k_{1-\beta} = 1,65$ als Wert ergibt [Taw12]. Die Berechnungen für die Erkennungs- und Nachweisgrenzen basieren auf der DIN ISO 11929 [119].

4.5. Methodvalidierung

Um die bisher beschriebene Methode zur gamma-spektrometrischen Bestimmung der spezifischen Aktivität von Radionukliden in Umweltproben zu validieren, wurden Referenzproben der *International Atomic Energy Agency* (kurz IAEA) gemessen und ausgewertet. Die Aktivitäten der Proben sind durch die IAEA zum Referenzdatum bekannt. Die Proben enthalten sowohl Cs-137 als auch Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen über das gesamte Spektrum verteilt und eignen sich daher sehr gut für die Überprüfung der bisher beschriebenen Methode. In der nachfolgenden Tabelle 4.3 sind die eigenen Ergebnisse und die Ergebnisse der IAEA (siehe A.2) dargestellt sowie deren Abweichung voneinander. Die Aktivitäten der IAEA wurden zur Vergleichbarkeit für das Referenzdatum 06.06.2017 berechnet. Für die Unsicherheit zu diesem Referenzdatum wurde die prozentuale Unsi-

Tabelle 4.3.: Vergleich der Messergebnisse mit den Werten der IAEA zur Methodenvalidierung (Referenzdatum: 06.06.2017). Dabei entspricht a der spezifischen Aktivität und $u(a)$ der Unsicherheit der spezifischen Aktivität.

Radionuklid	a [Bq/kg]	$u(a)$ [Bq/kg]	a [Bq/kg] (IAEA)	$u(a)$ [Bq/kg] (IAEA)	Differenz [Bq/kg]	Differenz in %	Beta
Sample 5, Soil							
Cs-137	102,6	5,2	104,8	2,6	-2,2	2,2	0,38
K-40	210,3	14,1	207,7	8,3	2,6	1,2	0,16
U-238	27,7	5,6	23,6	0,7	4,1	14,8	0,73
Pb-210	469,5	47,5	503,6	16,1	-34,1	7,3	0,68
Sample 4, Hay							
Cs-134	53,6	3,0	52,1	3,3	1,4	2,9	0,32
Cs-137	683,2	35,2	712,0	21,2	-36,8	5,4	0,89

cherheit der Aktivität am 01.01.2012 berücksichtigt und zur Berechnung der absoluten Unsicherheit am 06.06.2017 verwendet.

Der Vergleich der Referenzwerte mit den eigenen Messergebnissen zeigt, dass keine signifikanten prozentualen Abweichungen vorliegen, was für die Validität der Methode spricht. Alle Messwerte stimmen im Rahmen ihrer Messunsicherheit überein. Um diese Aussage zu unterstützen, wurden beide Messwerte mit Hilfe der Formel 4.24 auf ihre Verträglichkeit überprüft [WW05].

$$\beta \geq \frac{|x_1 - x_2|}{\sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}} \quad (4.24)$$

Um die Messwerte auf ihre Konformität zu prüfen, wurde in Anlehnung an die Arbeit von Kampmeier [Kam16] für das Kriterium $\beta = \sqrt{2}$ gewählt. Betrachten wir die Ergebnisse für Beta in Tabelle 4.3, ist die Bedingung für alle Messwerte erfüllt. Daher kann die Methode als valide angesehen werden.

5. Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der gamma-spektrometrischen Untersuchung vorgestellt. In der Tabelle 5.1 sind die Probenamen mit denen in den Abbildungen verwendeten Abkürzungen aufgelistet. Bei wiederholter Beprobung eines Probenahmeortes benennt die angehängte römische Bezifferungen die jeweilige Probenahme aus der die entsprechende Probe stammt.

Tabelle 5.1.: **Wasserproben der gamma-spektrometrischen Untersuchung**

Nr.	Probe	Abkürzung	Art des Gewässer	Probenahmedatum	Bezugsmasse [kg]
Fuhrberger Feld					
1	Regenwasser Juni/2	RW_Jun2	Regenwasser	15.07.2015	21,97
2	Regenwasser Juli/1	RW_Jul1	Regenwasser	31.07.2015	25,86
3	Meitzer Teich III	MT_III	stehendes Oberflächengewässer	16.09.2016	43,76
4	Wietze II	Wi_II	fließendes Oberflächengewässer	12.05.2016	36,60
5	Wulbeck II	Wu_II	fließendes Oberflächengewässer	30.06.2016	41,72
6	Schwengelpumpe V	SP_V	Grundwasser	30.06.2016	42,01
7	Schwengelpumpe VII	SP_VII	Grundwasser	17.11.2016	44,13
8	Pegelbrunnen 20041	P_041	Grundwasser	23.11.2016	43,30
9	Pegelbrunnen 20304	P_304	Grundwasser	22.11.2016	43,51
10	Pegelbrunnen 20429	P_429	Grundwasser	20.10.2016	39,30
11	Pegelbrunnen 20439	P_439	Grundwasser	22.11.2016	42,37
12	Rohwasser II	Roh_II	Grundwasser	14.12.2016	65,17
13	Reinwasser	ReinW	aufgearbeitetes Grundwasser	15.10.2015	23,20
Westharz					
14	Sösetalsperre Oberfläche	ST_Ob	Talsperrenwasser	28.04.2017	45,98
15	Sösetalsperre Ablauf	ST_Ab	Talsperrenwasser	28.04.2017	42,74
16	Sösetalsperre Sickerwasser	ST_Si	Talsperrenwasser	28.04.2017	4,06

Aus dem Fuhrberger Feld wurden Proben von verschiedenen Oberflächengewässern und Grundwässern untersucht. Die Probenahmestelle Schwengelpumpe wurde zweimal im Abstand von etwa 5,5 Monaten beprobt, um eventuelle Rückschlüsse auf zeitliche Veränderungen zu erlauben. Es handelt sich hierbei um eine Handpumpe, welche oberflächennahes Grundwasser aus einer Tiefe von etwa 3 m fördert. Die Pegelbrunnen dienen primär der Grundwasserpegelbestimmung und repräsentieren Tiefen von bis zu 23,5 m. Das Rohwasser II stammt aus der endgültigen Förderbrunnentiefe des Wasserwerks Fuhrberg von 28 m, das Reinwasser dagegen ist das aufbereitete Grundwasser, welches anschließend in das

5. Ergebnisse

Trinkwassernetz eingespeist wird.

Die Proben der Talsperre unterscheiden sich ebenfalls im Entnahmeort. Das Oberflächenwasser wurde kurz unter der Oberfläche des Stausees entnommen. Die Probe Ablauf wurde aus dem Grundablass, der in einer Tiefe von 50 m liegt bei 100% Stauziel, entnommen, wobei zum Zeitpunkt der Probenahme der Wasserstand der Talsperre nur 71% des Stauziels betrug. Bei dem Staudamm handelt es sich um einen Erddamm mit Betonkern und Lehmvorlage. Das Sickerwasser repräsentiert Wasser, das durch den Staudamm gesickert ist und aus dem Drainagesystem entnommen wurde. [Har]

Zu der Untersuchung von Wässern aus norddeutschen Trinkwassergewinnungsgebieten auf die Konzentration von Radionukliden wurden in der vorliegenden Arbeit zehn Wasserproben gemessen sowie die Ergebnisse von sechs Wasserproben aus der Arbeit von Faßbender [Faß16] berücksichtigt. Bei den Proben von Faßbender handelt es sich um die Proben Reinwasser, Schwengelpumpe V, Regenwasser Juni 2 und Juli 1 sowie den Proben Wietze II und Wulbeck II. In der Tabelle A.2 im Anhang befinden sich ausführliche Informationen zu allen Wasserproben. Hierzu zählt auch, woher die Ergebnisse stammen sowie das Referenzdatum, was dem Messdatum entspricht, zu dem die spezifische Aktivität der in den Proben enthaltenen Radionuklide angegeben ist. Außerdem wird die Messgeometrie und die Bezugsmasse, mit der die spezifische Aktivität in Bq/kg berechnet wurde, jeder Probe angegeben.

5.1. Messergebnisse

Folgend werden die Ergebnisse zu den verschiedenen Radionukliden in Tabelle 5.2 dargestellt, dabei werden die berechneten spezifischen Aktivitäten von Caesium-137, Kalium-40 und Radionukliden der natürlichen Zerfallsreihe von Uran-238 und Thorium-232 aufgeführt. Falls die spezifische Aktivität eines Nuklids unterhalb der Nachweisgrenze liegt, ist in diesem Fall diese mit einem <-Zeichen davor angegeben. Falls die Radionuklidgehalt unterhalb der Erkennungsgrenze lag, ist dies in der Tabelle durch <EG angegeben.

Tabelle 5.2.: **Ergebnisse**

Die spezifischen Aktivitäten verschiedener Radionuklide in mBq/kg. Für Radionuklide mit einer Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze wurde <Nachweisgrenze angegeben, für Aktivitäten unterhalb der Erkennungsgrenze <EG. Die Messunsicherheiten wurden nach [GUM95] und die Erkennungs- und Nachweisgrenzen nach der DIN ISO 11929 [119] berechnet.

Nr.	Probe	Abk.	Cs-137		K-40		U-238-Zerfallsreihe						Th-232-Zerfallsreihe			
			a	u(a)	a	u(a)	U-238		Ra-226		Pb-210		Ra-228		Th-228	
	Fuhrberger Feld		a	u(a)	a	u(a)	a	u(a)	a	u(a)	a	u(a)	a	u(a)		
			[mBq/kg]	[mBq/kg]	[mBq/kg]	[mBq/kg]	[mBq/kg]	[mBq/kg]	[mBq/kg]	[mBq/kg]	[mBq/kg]	[mBq/kg]	[mBq/kg]	[mBq/kg]		
1	Regenwasser Juni/2	RegW_Jun2	2,10	0,26	83,00	6,00	<EG	-	<1,60	-	7,70	1,20	<1,1	-	<0,76	-
2	Regenwasser Juli/1	RegW_Jul1	<0,71	-	14,00	4,00	<EG	-	<1,40	-	17,40	1,90	<0,96	-	<0,58	-
3	Meitzer Teich III	MT_III	<0,60	-	132,68	9,87	137,64	27,58	5,51	0,67	10,44	2,11	<3,98	-	<1,08	-
4	Wietze II	Wi_II	2,90	0,30	329,00	4,00	<EG	-	4,45	0,39	12,10	1,50	<1,6	-	<0,44	-
5	Wulbeck II	Wu_II	3,90	0,30	229,00	12,00	<EG	-	4,60	0,29	11,40	1,30	<EG	-	1,74	0,17
6	Schwengelpumpe V	SP_V	<EG	-	102,00	4,00	<EG	-	8,50	0,39	7,50	0,90	8,90	0,80	7,20	0,40
7	Schwengelpumpe VII	SP_VII	1,04	0,17	92,77	8,53	<70,70	-	4,17	0,56	11,22	1,75	6,40	1,25	4,45	0,40
8	Pegelbrunnen 20041	P_041	0,71	0,20	813,32	43,79	147,58	31,01	30,16	2,00	9,10	2,27	61,63	7,18	14,36	0,88
9	Pegelbrunnen 20304	P_304	0,84	0,21	26,12	7,98	119,70	27,06	5,53	0,69	<5,32	-	10,57	1,80	10,12	0,63
10	Pegelbrunnen 20429	P_429	<0,63	-	68,21	8,88	83,37	24,14	18,80	1,30	12,69	2,21	25,25	3,16	13,61	0,84
11	Pegelbrunnen 20439	P_439	1,05	0,19	394,92	22,45	<95,01	-	5,48	0,75	<6,18	-	11,40	1,86	3,35	0,42
12	Rohwasser II	Roh_II	0,51	0,14	80,33	9,71	90,65	19,88	54,56	3,36	9,11	1,85	55,61	6,41	20,29	1,12
13	Reinwasser	ReinW	<EG	-	154,00	6,00	<EG	-	2,15	0,29	5,30	0,90	3,40	0,70	1,45	0,20
	Westharz															
14	Sösetalsperre Oberfläche	ST_Ob	0,47	0,12	34,87	7,25	<64,85	-	21,28	1,44	4,90	1,29	25,43	3,05	2,11	0,31
15	Sösetalsperre Ablauf	ST_Ab	<0,51	-	31,39	6,66	<83,46	-	<3,14	-	<5,02	-	<4,17	-	2,25	0,41
16	Sösetalsperre Sickerwasser	ST_Si	<7,13	-	303,44	86,88	<971,21	-	<44,59	-	<68,68	-	<52,49	-	<16,33	-

5. Ergebnisse

Die Regenwasserproben Juni/2 und Juli/1 zeigen deutliche Unterschiede in den spezifischen Aktivitäten der verschiedenen Radionuklide. Im Gegensatz zum Regenwasser aus der zweiten Juni-Hälfte konnte im Regenwasser der ersten Juli-Hälfte kein Cs-137 nachgewiesen werden. Auch der Kalium-40-Gehalt ist in der Probe Juli/1 niedriger als in der Probe Juni/2. Der Pb-210 ist dagegen in der Probe aus der ersten Juli-Hälfte mehr als doppelt so hoch wie noch in der zweiten Juni-Hälfte.

In den Flüssen Wietze und Wulbeck konnte jeweils eine spezifische Aktivität von 2,9 und 3,9 mBq/kg des Cs-137-Isotops nachgewiesen werden. Der Kalium-Gehalt ist in beiden Flüssen im Vergleich mit den restlichen Proben relativ hoch. In beiden Flüssen konnten zudem Radionuklide der Uran-238-Zerfallsreihe nachgewiesen werden, in diesem Fall Pb-210 und Ra-226. Nuklide der Thorium-232-Zerfallsreihe konnten nur in der Wulbeck nachgewiesen werden.

Die Ergebnisse für die zu verschiedenen Zeitpunkten entnommenen Proben der Schwengelpumpe lassen erkennen, dass geringe Unterschiede zwischen den spezifischen Aktivitäten verschiedener Radionuklide auftreten. Cs-137 konnte lediglich in der Probe aus dem November (VII) nachgewiesen werden, in der Probe der Schwengelpumpe aus dem Juni (V) lag die spezifische Aktivität dieses Nuklids unterhalb der Erkennungsgrenze. Auch die Radionuklide der Uran-Zerfallsreihe unterscheiden sich geringfügig in den spezifischen Aktivitäten. In der Probe V ist der Ra-226-Gehalt etwas höher als in Probe VII, dagegen ist der Gehalt an Pb-210 in der Probe VII etwas höher. Die Radionuklide Th-228 und Ra-228 sind beide in der Probe V in etwas höherer Konzentration enthalten als in der Probe VII, allerdings sind die Unterschiede im Rahmen der Messunsicherheit nur klein.

In den Pegelbrunnen an unterschiedlichen Standorten im Fuhrberger Feld konnte an drei von vier Standorten Cs-137 mit ähnlichen spezifischen Aktivitäten im Grundwasser nachgewiesen werden, wobei die Nachweisgrenze am vierten Standort ähnlich hoch ist wie die nachgewiesenen spezifischen Aktivitäten. Der Kalium-Gehalt der Pegelbrunnen-Proben schwankt dagegen sehr stark und reicht dabei von 26,12 mBq/kg bis zu 813,32 mBq/kg. Auch die Konzentrationen der Radionuklide der Uran- und Thorium-Reihe schwanken zwischen den einzelnen Proben, wobei die Probe des Pegelbrunnen 20439 eher niedrige Gehalte aufweist und die Probe des Pegelbrunnens 20041 bis auf Pb-210 die höchsten Gehalte der natürlichen Radionuklide hat.

Bei den Wasserproben aus dem Wasserwerk Fuhrberg sind wesentliche Unterschiede der Radionuklidgehalte zu beobachten. Das Reinwasser, welches bereits im Wasserwerk aufbereitet wurde, hat deutlich geringere spezifische Aktivitäten der verschiedenen Radionuklide, die einzige Ausnahme bildet hierbei Kalium-40, dessen Aktivität im Reinwasser nahezu doppelt so hoch ist wie im Rohwasser des Wasserwerks. Im Rohwasser ist eine vergleichsweise geringe Cs-137-Aktivität von 0,51 mBq/kg gefunden worden, die Cs-137-Aktivität im Reinwasser liegt unterhalb der Erkennungsgrenze. Auch Uran-238 konnte ausschließlich im Rohwasser nachgewiesen werden. Die spezifischen Aktivitäten der Nuklide Ra-226,

Ra-228 und Th-228 sind im Rohwasser ebenfalls mindestens um den Faktor 10 größer als im Reinwasser. Der Pb-210-Gehalt liegt im Rohwasser mit $9,11 \pm 1,85$ mBq/kg nicht ganz so deutlich über dem des Reinwassers mit einer spezifischen Aktivität von $5,30 \pm 0,90$ mBq/kg.

Die Betrachtung der drei Wasserproben aus der Sösetalsperre im Westharz zeigt, dass die Radionuklidgehalte der Proben Oberfläche und Ablauf ähnlich sind. Die Ergebnisse der Proben Oberfläche (14) und Ablauf (15) lassen erkennen, dass nur in der Probe, die der Oberfläche des Stausees entnommen wurde, Cs-137 nachgewiesen werden konnte, wobei die Nachweisgrenze für die Probe Ablauf mit der Cs-137-Aktivität der Probe Oberfläche nahezu identisch ist. Der Kalium-40-Gehalt beider Proben ist im Bereich der Unsicherheit als gleich anzusehen. In der Probe Ablauf konnten keine Radionuklide der Uran-Reihe, dagegen aber mit Th-228 ein Nuklid der Thorium-Reihe nachgewiesen werden. In der Probe Oberfläche wurden dagegen mit Ra-226, Pb-210 und Th-228 sowie Ra-228 Vertreter beider Zerfallsreihen nachgewiesen. Außerdem ist zu erkennen, dass die Nachweisgrenzen im Sickerwasser (16) deutlich über denen der restlichen Proben liegen, was auf das verhältnismäßig geringe Probevolumen von 4 l im Gegensatz zu den üblichen 40 l Probevolumen zurückzuführen ist. Im Sickerwasser konnte zudem lediglich Kalium-40 nachgewiesen werden.

6. Diskussion

Die Ergebnisse haben gezeigt, dass der Radionuklidgehalt der Regenwasserproben sehr unterschiedlich ist. In der Probe Juni/2 waren deutlich höhere Kalium-40- und Caesium-137-Aktivitäten als in der Probe Juli/1. Eine mögliche Ursache für diese Unterschiede können Veränderungen der Wetterbedingungen sein. Aufgrund des mangelnden Bodenkontakts der Proben kann vermutet werden, dass die Radionuklide K-40 und Cs-137 als Aerosolpartikel in die Luft gelangen und durch Niederschläge ausgewaschen werden. In der Zeit vor Beginn der Probennahme Juni/2 war es sehr trocken, wodurch mehr Staub aufgrund der trockenen Böden in die Luft gelangen kann als bei feuchten Böden wie in der ersten Julihälfte. Durch die anschließenden Niederschläge könnte dieser Staub mit den Radionukliden K-40 und Cs-137 in die Probe gelangt sein. Die Niederschläge Ende Juni und im Juli selbst könnten die Migration von Kalium und Caesium durch feuchtere Böden gemindert haben und infolgedessen die Radionuklidkonzentration in der Probe Juli/1 verringert haben. Der Pb-210-Gehalt verhält sich in den beiden Regenwasserproben dagegen umgekehrt. Dieses Radionuklid kann durch die Auswaschung von Radon-222 und dessen Tochternukliden aus der Luft in die Proben gelangen. Der höhere Gehalt in die Probe Juli/1 könnte ein Indiz dafür sein, dass eine kontinuierliche Auswaschung aus der Luft zu höheren Einträgen dieses Nuklids führt, da es in der ersten Julihälfte mehr Niederschläge als in der zweiten Junihälfte gab.

Bei der Betrachtung der beiden Proben Schwengelpumpe V und VII konnten nur geringe Unterschiede der Radionuklidkonzentrationen festgestellt werden. Die geringfügigen Schwankungen waren zu erwarten, da das Grundwasser kein statisches sondern ein dynamisches System ist. Im Fuhrberger Feld verläuft die Fließrichtung des Grundwassers von Süden nach Norden. Daher wurden Pegelbrunnen für die Beprobung ausgewählt, die entlang dieser Achse verlaufen, wie in Abbildung 2.3 zu erkennen ist.

Die Proben aus dem Wasserwerk Fuhrberg, das Rohwasser aus der Förderbrunnentiefe von 28 m und das aus dem Rohwasser aufbereitete Reinwasser, lassen deutliche Abweichungen in der Konzentration der natürlichen Radionuklide erkennen. Bei der Aufbereitung des Rohwassers im Wasserwerk ist ein wesentlicher Schritt die Fällung von Eisen, indem die Eisenverbindungen oxidiert werden. Zudem wird dem Rohwasser Kaliumpermanganat und Kalkhydrat zugegeben, wie in Abbildung A.3 zu erkennen ist [AG15]. Die Ergeb-

6. Diskussion

nisse der Radionuklide der Uran-238- und Thorium-232-Zerfallsreihe zeigen, dass durch die Eisenfällung während der Aufbereitung ein Großteil der Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen ebenfalls ausfallen. Der Kalium-40-Gehalt nimmt dagegen durch die Aufbereitung im Wasserwerk zu. Eine mögliche Erklärung ist die Zugabe von Kalium über Kaliumpermanganat während der Aufbereitung oder Spuren von Kalium im zugegebenen Kalkhydrat.

Die Grundwasserproben des Fuhrberger Felds lassen keine Korrelation zwischen der Grundwassertiefe und den spezifischen Aktivitäten verschiedener Radionuklide erkennen. Dennoch ist der Gehalt der Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen in der Rohwasser II Probe aus der größten Tiefe von 28 m höher als in den Proben, die einer geringeren Tiefe entnommen wurden. Eine Ausnahme bildet hierbei Uran-238, was eventuell auf den kleineren Sauerstoffgehalt im tieferen Grundwasser zurückzuführen sein könnte. Die Pegelbrunnen zeigen die Tendenz eines abnehmenden Radionuklidgehalts von Süden nach Norden. Die Abbildung 6.1 zeigt dabei die spezifischen Aktivitäten verschiedener Radionuklide, dabei sind die Lage der Pegelbrunnen von links nach rechts von Süden nach Norden angeordnet. In der Abbildung 6.1 ist zu erkennen, dass für die Radionuklide Ra-226, Pb-210,

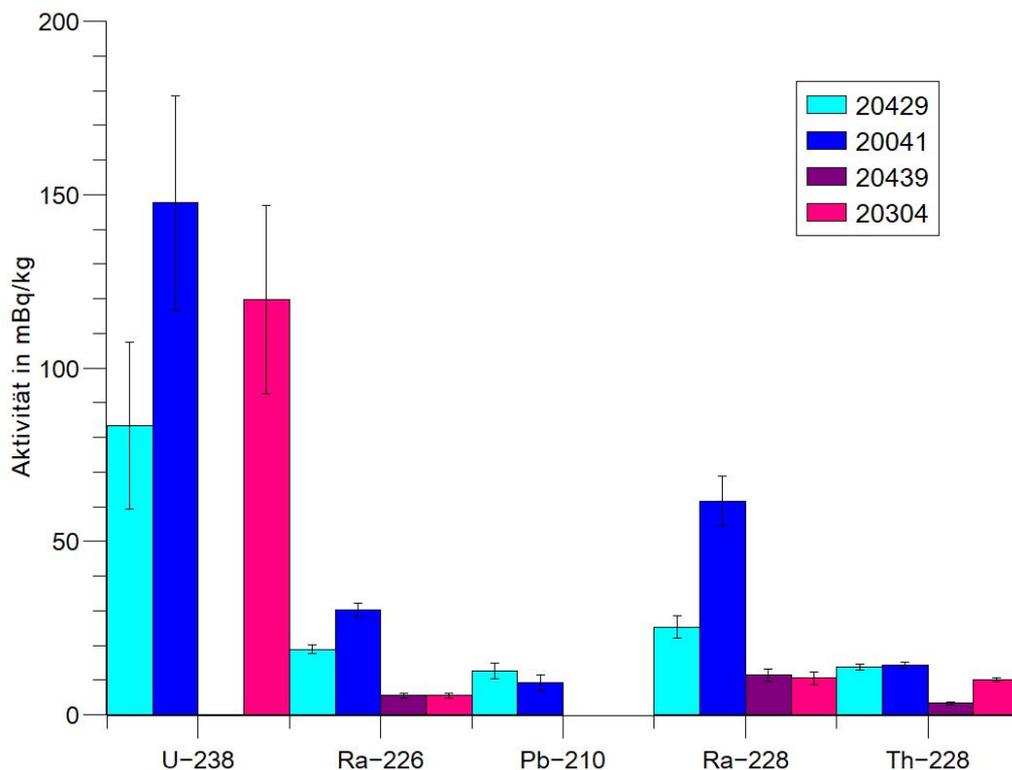


Abbildung 6.1.: Spezifische Aktivitäten verschiedener Radionuklide in den Wasserproben der Pegelbrunnen

Ra-228 und Th-228 die spezifischen Aktivitäten im Wasser der beiden südlichen Pegelbrunnen 20429 und 20041 höher sind als im Wasser der nördlichen Pegelbrunnen 20439

und 20304.

Die Ergebnisse der Wasserproben aus dem Fuhrberger Feld lassen in Bezug auf die Radionuklide natürlicher Zerfallsreihen weitere Eigenschaften erkennen. In der Abbildung 6.2 ist das Verhältnis von Ra-228 zu Th-228 dargestellt. Die grün-gestrichelte Linie repräsentiert dabei das theoretische Gleichgewicht zwischen beiden Radionukliden. Es ist deutlich zu

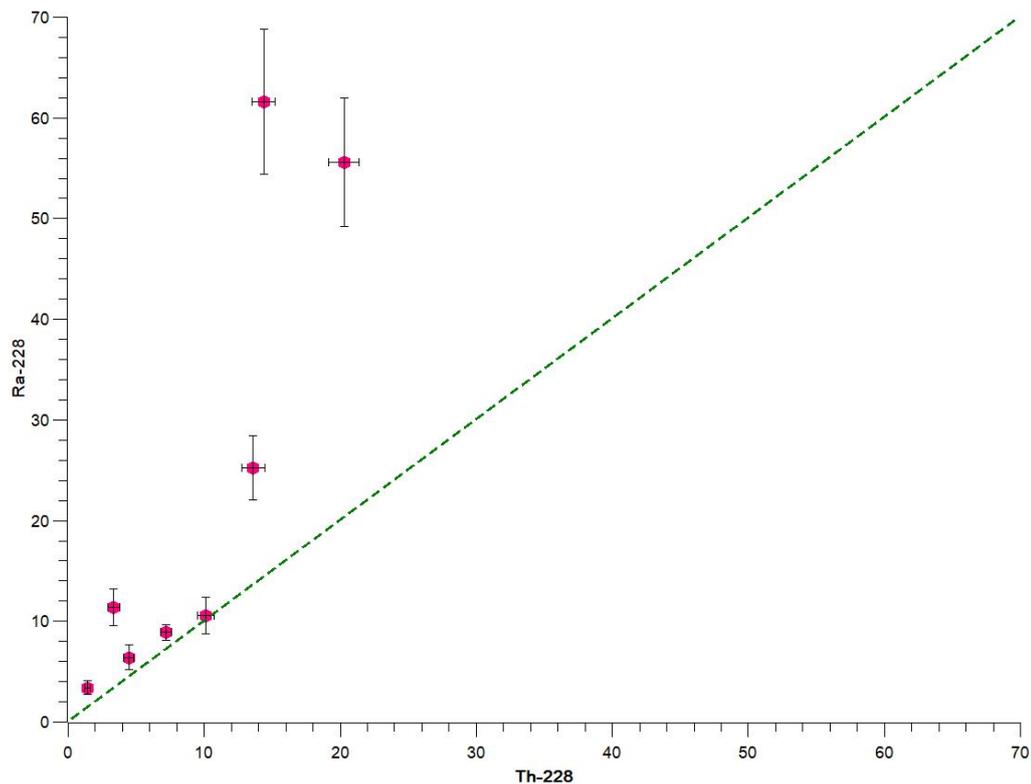


Abbildung 6.2.: Verhältnis der spezifischen Aktivitäten von Th-228 und Ra-228 in verschiedenen Grundwasserproben des Fuhrberger Felds

erkennen, dass das Verhältnis fast aller Proben in Richtung von Ra-228 verschoben ist. Aufgrund der höheren Löslichkeit von Radium gegenüber Thorium war dieses Ergebnis zu erwarten. Des weiteren ist zu erkennen, dass der Ra-226-Gehalt gegenüber dem Pb-210-Gehalt in den Grundwasserproben höher ist, in den Proben des Oberflächenwassers verhält es sich dagegen umgekehrt. In den Grundwasserproben ist dies wahrscheinlich auf das flüchtige Edelgas Rn-222 innerhalb der Uran-Zerfallsreihe zurückzuführen, wodurch weniger Pb-210 im Grundwasser gebildet wird. In den Oberflächengewässern werden dagegen vermutlich die Radontöchter über Niederschläge eingetragen und somit der Pb-210-Gehalt gegenüber dem Ra-226-Gehalt erhöht. Weiterhin kann festgestellt werden, dass das Verhältnis zwischen Ra-226 und Ra-228 in den Grundwasserproben zwischen 0,5 und 1 liegt.

Im Fuhrberger Feld wurden verschiedene Arten von Oberflächengewässern beprobt. Zum

6. Diskussion

einem wurde der Meitzer Teich, ein Baggersee und folglich ein stehendes Oberflächengewässer, zum anderen als Fließgewässer die Flüsse Wietze und Wulbeck als Probenahmeort ausgewählt. Im Gegensatz zu den Flüssen konnte im Meitzer Teich kein Caesium-137 nachgewiesen werden. Dagegen ist der Gehalt an Uran-238 im Meitzer Teich vergleichsweise hoch, wobei Uran-238 in den Flussproben nicht nachgewiesen werden konnte. Die spezifischen Aktivitäten der Wasserproben der Wietze und Wulbeck ähneln besonders bezogen auf Caesium-137 und Uran-238 den Regenwasserproben. Die Radionuklidgehalte des Meitzer Teichs stimmen eher mit den Grundwasserproben des Fuhrberger Feldes überein. Die Beobachtungen legen nahe, dass der Baggersee Meitzer überwiegend durch Grundwasser gespeist wird, wohingegen die Flüsse Wietze und Wulbeck eher durch Niederschläge gespeist werden.

Für die Proben aus der Sösetalsperre kann festgestellt werden, dass nahezu keine Veränderung des Radionuklidgehalts im Wasser in Abhängigkeit der Entnahmetiefe vorzufinden ist. Eine Ausnahme bildet jedoch das Element Radium. Die Isotope Ra-226 und Ra-228 der Uran- und Thorium-Zerfallsreihe sind in der Probe Oberfläche mit Aktivitäten deutlich oberhalb der Nachweisgrenze vorzufinden, in der Probe Ablauf liegen die Nachweisgrenzen wesentlich unter der spezifischen Aktivität der Oberflächenprobe. Die Ergebnisse des Sickerwassers haben aufgrund des geringen Probevolumens sehr hohe Nachweisgrenzen, allerdings ist der Kalium-40-Gehalt der Probe nahezu um einen Faktor zehn größer als in den Proben Oberfläche und Ablauf, wodurch sich ein Einfluss des Bodens auf die Radionuklidkonzentration beim Sickerprozess erahnen lässt.

Durch die Betrachtung aller Wasserproben aus dem Fuhrberger Feld können bezüglich des Caesium-137-Gehalts einige Vermutungen getroffen werden. In den Wasserproben des Grundwassers ist der Caesium-137-Gehalt geringer als in den Wasserproben von Gewässern, die überwiegend durch Niederschläge gespeist zu werden scheinen. Die Abbildung 6.3 zeigt die Aktivität von Cs-137 in verschiedenen Proben. Die rot umkreisten Ergebnisse wären dabei eher den Oberflächengewässern mit hohem Niederschlagsanteil zuzuordnen und die blau umrandeten Proben den Grundwässern und Gewässern mit hohem Grundwasseranteil. Dies ist ein Hinweis darauf, dass Caesium-137 überwiegend im Oberflächenbereich gebunden wird, was bereits in der Arbeit von Faßbender [Faß16] durch die Ergebnisse der Boden- und Litterproben vermutet wurde. Auch Kaiser [Kai16] stellt in seiner Arbeit die Hypothese auf, dass durch die Bindung von Caesium-137 im Oberflächenboden eine Infiltration des Grundwassers vermindert wird. Durch den oberflächennahen Verbleib könnte Caesium-137 daher stärker in niederschlagsgespeiste Gewässer durch Aerosolpartikel gelangen als in das Grundwasser. Die Ergebnisse der Harztalsperre ähneln bezüglich des Caesium-137-Gehalts eher den Ergebnissen der Grundwasserproben. Aufgrund der aktuellen Datenlage ist allerdings keine fundierte Aussage möglich. Die spezifische Aktivität des Kalium-40-Isotops zeigt eine deutliche Streuung über alle Probenarten und es lassen sich keine klaren Trends erkennen. Einen Einfluss auf den Kalium-Gehalt hat möglicherweise

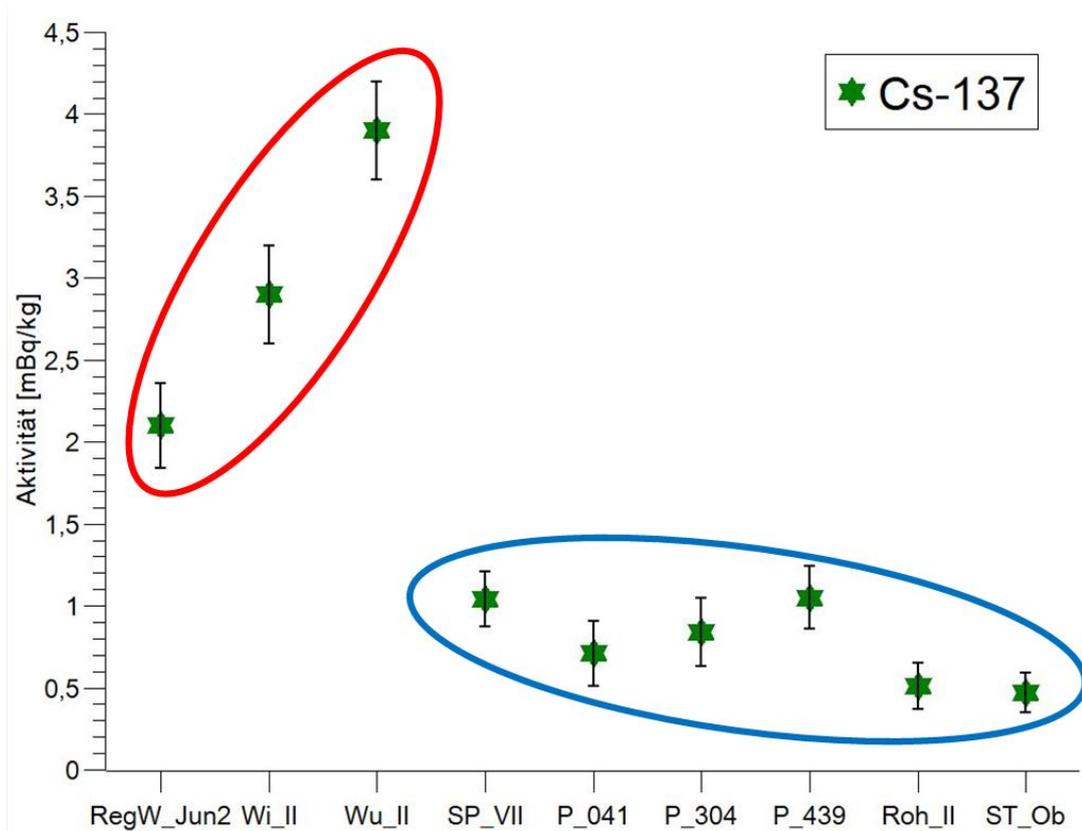


Abbildung 6.3.: Cs-137 Aktivität verschiedener Wasserproben

die Nähe zu landwirtschaftlich genutzten Flächen in die kaliumhaltiger Dünger eingetragen wird. In der Abbildung 2.3 ist zu erkennen, dass die Pegelbrunnen 20439 und 20041 sowie die Wietze, in denen die höchsten Kalium-40-Aktivitäten festgestellt wurden, von Ackerflächen umgeben sind. Für eine valide Aussage in dieser Hinsicht wären allerdings weitere Untersuchungen diesbezüglich hilfreich. In der Abbildung 6.4 ist das Verhältnis von Kalium-40 zu Caesium-137 aller Wasserproben aufgetragen, in denen sich Caesium-137 mit einer Aktivität oberhalb der Nachweisgrenze befindet. Die Abbildung lässt keine Korrelation zwischen den spezifischen Aktivitäten von Kalium-40 und Caesium-137 erkennen, obwohl beide Elemente zu den Alkalimetallen gehören und ähnliche chemische Eigenschaften besitzen. Bei einem konstanten Verhältnis beider Nuklide, also eine Abhängigkeit der Konzentrationen voneinander, hätten sich alle Punkte in der Abbildung im Rahmen der Unsicherheit auf einer Linie befinden müssen.

In der Tabelle 6.1 sind Dosiswerte für die verschiedenen Wasserproben dargestellt. Hierbei handelt es sich um die zusätzliche effektive Jahresdosis E , die durch die fünf Radionuklide U-238, Ra-226, Ra-228, Pb-210 und Cs-137 in den Proben verursacht werden.

6. Diskussion

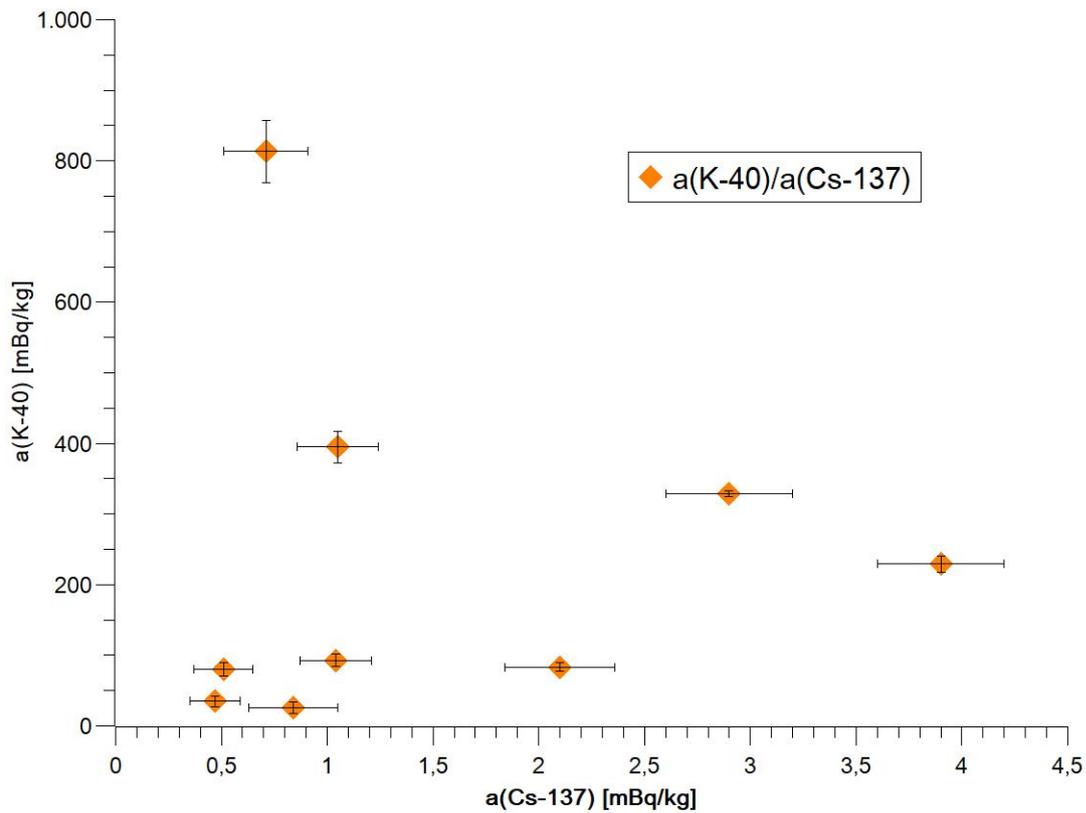


Abbildung 6.4.: Verhältnis von K-40 und Cs-137 verschiedener Proben

Tabelle 6.1.: Zusätzliche Jahresdosen E verschiedener Proben und der Anteil der betrachteten Radionuklide

Probe	Cs-137 [$\mu\text{Sv/a}$]	U-238 [$\mu\text{Sv/a}$]	Ra-226 [$\mu\text{Sv/a}$]	Pb-210 [$\mu\text{Sv/a}$]	Ra-228 [$\mu\text{Sv/a}$]	E [$\mu\text{Sv/a}$]
Regenwasser Juni/2	0,02	-	-	3,85	-	3,9
Regenwasser Juli/1	-	-	-	8,70	-	8,7
Meitzer Teich III	-	4,59	1,10	5,22	-	5,8
Wietze II	0,03	-	0,89	6,05	-	7,0
Wulbeck II	0,04	-	0,92	5,70	-	6,7
Schwengelpumpe V	-	-	1,70	3,75	4,45	9,9
Schwengelpumpe VII	0,01	-	0,83	5,61	3,20	9,7
Pegelbrunnen 20041	0,01	4,92	6,03	4,55	30,81	46,3
Pegelbrunnen 20304	0,01	3,99	1,11	-	5,29	10,4
Pegelbrunnen 20429	-	2,78	3,76	6,35	12,62	25,5
Pegelbrunnen 20439	0,01	-	1,10	-	5,70	6,8
Rohwasser II	-	3,02	10,91	4,56	27,81	46,3
Reinwasser	-	-	0,43	2,65	1,70	4,8
Sösetalsperre Oberfläche	-	-	4,26	2,45	12,72	19,4
Sösetalsperre Ablauf	-	-	-	-	2,09	2,1

Die Werte beurteilen lediglich die Dosis durch die aufgeführten Nuklide und stellen nicht die verursachte Gesamtdosis durch das Wasser dar. Dabei orientiert sich die Rechnung an den Referenz-Aktivitätskonzentrationen (siehe Tabelle A.3) der Trinkwasserverordnung [BMG16]. Die berechnete zusätzliche Jahresdosis bezieht sich hierbei auf den hypothetischen Verzehr von 730 l Wasser dieser Probe als Trinkwasser eines Erwachsenen in einem Jahr. Eine detaillierte Ausführung der Berechnung befindet sich im Anhang A.1.2.

Die Ergebnisse für die zusätzliche Dosis durch die fünf berücksichtigten Radionuklide schwanken zwischen 2,1 $\mu\text{Sv/a}$ und 46,3 $\mu\text{Sv/a}$. Den Maximalwert stellt dabei die Probe Rohwasser II aus dem Wasserwerk Fuhrberg dar. Das Reinwasser gehört dagegen zu den Proben mit den niedrigsten zusätzlichen Jahresdosen, was als Folge der Fällung eines Großteils der Radionuklide während der Aufbereitung resultiert. Die von der Trinkwasserverordnung vorgegebene Richtdosis beträgt 0,1 mSv/a. Bei Überschreitung dieser Richtdosis wird geprüft und entschieden, ob eine intensivere Trinkwasserüberwachung und gegebenenfalls eine Aufbereitung notwendig ist [BHW17].

Die effektive Jahresdosis, verursacht durch die natürliche Strahlenexposition, einer erwachsenen Person beträgt durchschnittlich etwa 2,1 mSv/a (Bevölkerung Deutschlands im Jahr 2014). Hierbei stellt die innere Strahlenbelastung durch Inhalation und Ingestion 1,4 mSv/a dar, wobei die Inhalation von Rn-222 hierzu einen Beitrag von etwa 1,1 mSv/a leistet. Hinzu kommt die Strahlenexposition zivilisatorischen Ursprungs, wie zum Beispiel durch medizinische Untersuchungen oder berufliche Strahlenexposition. Diese kann deutlich höhere Jahresdosen für Einzelpersonen verursachen als die natürliche Strahlenexposition [Bun16]. Die Richtdosis der Trinkwasserverordnung ist daher eher konservativ gewählt, sodass je nach Grad der Überschreitung dieser Richtdosis über entsprechende Maßnahmen entschieden wird. Bei Betrachtung der verursachten zusätzlichen Dosis der Rohwasserprobe ist zu erkennen, dass die Richtdosis zu 46,3 % erreicht wird, wobei nicht alle für die Berechnung notwendigen Radionuklide berücksichtigt wurden. Daher kann nicht beurteilt werden, ob die Richtdosis eingehalten wird, allerdings ist zu erkennen, dass die verursachte Dosis durch die berücksichtigten Radionuklide bereits knapp die Hälfte der Richtdosis beträgt. In Anbetracht der natürlichen Dosis durch Ingestion von 0,3 mSv/a ist dagegen die zusätzliche Dosis eher gering. Besonders deutlich wird die verhältnismäßig geringe zusätzliche Dosis des aufbereiteten Reinwassers, das bei ausschließlicher Berücksichtigung der fünf betrachteten Nuklide etwa ein Zehntel der Dosis des Rohwassers verursacht.

7. Fazit und Ausblick

In dieser Arbeit wurden zehn Wasserproben aus zwei verschiedenen Trinkwassergewinnungsgebieten gamma-spektrometrisch untersucht und zusammen mit den Ergebnissen von sechs Wasserproben aus der Arbeit von Faßbender diskutiert. In Bezug auf den Eintrag von künstlichen Radionukliden, hier explizit Caesium-137, konnten Unterschiede im Gehalt der verschiedenen Proben festgestellt werden. Oberflächengewässer, die überwiegend durch Niederschläge gespeist werden, weisen deutlich höhere Caesium-137-Gehalte auf als diese im Grundwasser vorzufinden sind. Dies ist vermutlich auf die überwiegende Sorption von Caesium-137 in der oberen Bodenschicht zurückzuführen. Aufgrund dieser Ergebnisse ist eine stark verzögerte Migration bis in das Grundwasser selbst bei einem ungeschützten Grundwasserleiter wie im Fuhrberger Feld zu erwarten.

Des Weiteren konnte keine Korrelation zwischen den Konzentrationen von Caesium-137 und Kalium-40 in den Wasserproben beobachtet werden. Das Vorkommen von Radionukliden der natürlichen Zerfallsreihen konnte ebenfalls nachgewiesen werden. Insbesondere die Regenwasserproben konnten zeigen, dass Pb-210 über Niederschläge einen erheblichen Beitrag zur Gesamtkonzentration dieses Radionuklids vor allem in Oberflächengewässern darstellen kann.

Als nächstes Ziel bietet sich die Analyse der Wasserproben aus der Granetalsperre an. Diese kann die Datenlage in Bezug auf das Trinkwassergewinnungsgebiet Westharz verbessern, sodass die Ergebnisse gemeinsam mit denen der Sösetalsperre eventuell mehr Aufschluss über das Verhalten von Radionukliden in Wässern dieses Gebiets geben können.

Da in dieser Arbeit ausschließlich der Eintrag von Caesium-137 als anthropogen beeinflusstes Radionuklid betrachtet wurde, weil Caesium-137 sehr gut gamma-spektrometrisch nachweisbar ist, kann als nächster Schritt im Rahmen des Verbundprojekts Transaqua ebenfalls der Eintrag anderer künstlicher Radionuklide betrachtet werden. Hierbei wäre zu untersuchen, ob sich Zusammenhänge zwischen der Migration von Caesium-137 und anderen künstlichen Radionukliden in Trinkwasserreservoirs erkennen lassen.

Literaturverzeichnis

- [119] DIN ISO 11929. *Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Vertrauensbereichs) bei Messungen ionisierender Strahlung - Grundlagen und Anwendungen*. Deutsches Institut für Normung. Beuth Verlag Berlin, 2011.
- [AG15] Stadtwerke Hannover AG. *enercity Wasser - Natürlich aus der Region. Seit über 100 Jahren*. Online verfügbar unter <https://www.enercity.de/infotehek/downloads/broschueren/wasser/trinkwasser-enercity.pdf>, zuletzt aufgerufen am 29.05.17, 2015.
- [Bü71] Harald Büker. *Theorie und Praxis der Halbleiterdetektoren für Kernstrahlung*. Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York J. F. Bergmann Verlag München, 1971.
- [BHW17] Dr. Beyermann, Dr. Hofmann, and Dr. Wittwer. *Leitfaden zur Untersuchung und Bewertung von radioaktiven Stoffen im Trinkwasser bei der Umsetzung der Trinkwasserverordnung*. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB), 2017.
- [BMG16] *Trinkwasserverordnung in der Fassung der Bekanntmachung vom 10. März 2016*. BGBl. Teil I Nr. 12 S.459-491, 2016.
- [Bun16] Deutscher Bundestag. *Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung im Jahr 2014*. Bundesanzeiger Verlagsgesellschaft mbH, 2016.
- [Dem14] Wolfgang Demtröder. *Experimentalphysik 4: Kern-, Teilchen- und Astrophysik*. 4., überarbeitete und aktualisierte Auflage. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2014.
- [DS90] Klaus Debertain and Ulrich Schötzig. *Bedeutung von Summationskorrekturen*

bei der Gammastrahlen-Spektrometrie mit Germaniumdetektoren. Tabelle B3. Physikalisch Technische Bundesanstalt, 1990.

- [Faß16] Sebastian Faßbender. *Nachweis von Radionukliden in Norddeutschen Trinkwasserreservoirs.* Masterarbeit. Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2016.
- [fkE17] Bundesamt für kerntechnische Entsorgungssicherheit. *Der Unfall Tschernobyl.* Online verfügbar unter <http://www.bfe.bund.de/DE/kt/unfaelle/tschernobyl/tschernobynode.html>, zuletzt aufgerufen am 09.05.17, 2017.
- [FM09] Heike Fortmann and Henning Meeseburg. *Radioaktives Cäsium in Waldböden Niedersachsens - 20 Jahre nach Tschernobyl.* Online verfügbar unter <http://www.lbeg.niedersachsen.de/download/1324/GeoBerichte11.pdf>, zuletzt aufgerufen am 08.05.2017, 2009.
- [FPD⁺97] Gudrun Franken, Martina Puhmann, Wilhelmus H.M. Duijnsveld, Jürgen Böttcher, and Otto Strebel. *Auswirkung saurer atmosphärischer Deposition bei Nadelwald auf Stoffanlieferung an das Grundwasser und Stoffumsetzungen in einem Aquifer aus basenarmen Sanden.* Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, 1997. Kap. 1-2.
- [GUM95] *Guide to the expression of uncertainty in measurement (corrected and reprinted, 1995).* BIPM: International Bureau of Weights and Measures, IEC, IFCC, ISO, IUPAC, IUPAP, OIMI, 1995.
- [Har] *Flyer Sösetalsperre.* online Verfügbar unter <http://www.harzwasserwerke.de/ueber-uns/anlagen/talsperren/soesetalsperre/>, zuletzt aufgerufen am 27.07.2017. Harzwasserwerke GmbH.
- [Kai16] Paul Ferdinand Kaiser. *Gammaspektroskopie zum Nachweis von Cs-137 Aktivitäten und deren vertikale Verteilung in Bodenprofilen.* Bachelorarbeit. Universität Hamburg, 2016.
- [Kam16] Tobias Kampmeier. *Gamma-spektrometrische Untersuchungen von Sedimentproben aus ehemaligen Uranabbaugebieten (Muldereion).* Bachelorarbeit. Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, Dez 2016.

- [Kno10] Glenn F. Knoll. *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley & Sons, Inc, 2010.
- [Mü15] Helmholtz Zentrum München. *Homepage des Verbundprojekts TransAqua*. Online verfügbar unter <https://transaqua.helmholtz-muenchen.de/index.html>, zuletzt aufgerufen am 23.05.2017, 2015.
- [MK02] Theo Mayer-Kuckuk. *Kernphysik*. 7., überarbeitete und erweiterte Auflage. B. G. Teubner Stuttgart, Leipzig, Wiesbaden, 2002.
- [MPDS12] J. Magill, G. Pfenning, R. Dreher, and Z. Sóti. *Karlsruher Nuklidkarte*. 8. Auflage. Nucleonica GmbH, 2012.
- [Sto03] Werner Stolz. *Radioaktivität Grundlagen - Messung - Anwendungen*. 4., überarbeitete und erweiterte Auflage. B.G. Teubner Stuttgart Leipzig Wiesbaden, 2003.
- [Taw12] Frank Tawussi. *Gammaspektrometrische Untersuchung von Umweltproben*. Masterarbeit. Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, Sep 2012.
- [Vah04] Jan-Willem Vahlbruch. *Über den Transfer von natürlichen Radionukliden in terrestrischen Ökosystemen und die realistische Modellierung der natürlichen Strahlenexposition in Norddeutschland*. Dissertation. Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2004.
- [Vol12] Martin Volkmer. *Radioaktivität und Strahlenschutz*. Deutsches Atomforum e.V. Berlin, 2012.
- [VS11] Hans-Gerrit Vogt and Heinrich Schultz. *Grundzüge des praktischen Strahlenschutzes*. 6., überarbeitete Auflage. Carl Hanser Verlag, 2011.
- [WW05] Klaus Weise and Wolfgang Wöger. *Messunsicherheit und Messdatenauswertung*. Forschen - Messen - Prüfen. Weinheim: Wiley-VCH, 2005.

8. Verzeichnisse

Abbildungsverzeichnis

2.1. Trinkwasser	4
2.2. Verschiedene Gewässer der Probenahme	6
2.3. Fuhrberger Feld	7
3.1. Zerfallsreihe	13
3.2. Zerfallsschema Cs-137	15
3.3. Zerfallsschema K-40	16
4.1. Wechselwirkungsarten im Vergleich	19
6.1. Spezifische Aktivitäten verschiedener Radionuklide in den Wasserproben der Pegelbrunnen	38
6.2. Verhältnis der spezifischen Aktivitäten von Th-228 und Ra-228 in verschie- denen Grundwasserproben des Fuhrberger Felds	39
6.3. Cs-137 Aktivität verschiedener Wasserproben	41
6.4. Verhältnis von K-40 und Cs-137 verschiedener Proben	42
A.1. Das charakteristische K-40 Spektrum eines Gammadetektors	59
A.2. Ergebnisse der IAEA	60
A.3. Aufbereitung des Rohwassers im Wasserwerk	62

Tabellenverzeichnis

1.1. Transaqua Teilprojekt	1
4.1. Eigenschaften des Germanium-Detektors	21
4.2. Emissionslinien	26
4.3. Methodenvalidierung	29
5.1. Wasserproben	31
5.2. Ergebnisse	33
6.1. Zusätzliche Jahresdosen E verschiedener Proben und der Anteil der betrachteten Radionuklide	42
A.1. Multinuklidlösung QCY 48	60
A.2. Wasserproben (ausführlich)	61
A.3. Referenz-Aktivitätskonzentrationen [BMG16]	63

A. Anhang

A.1. Ergänzungen

A.1.1. Natürliche Radionuklide

Primordial

Als primordiale Radionuklide bezeichnet man radioaktive Nuklide, die bereits bei der Entstehung der Erde vor etwa $4,6 \cdot 10^9$ Jahren vorhanden waren, aber aufgrund der sehr langen Halbwertszeit heute noch in der Umwelt vorkommen. Beispiele für primordiale Radionuklide sind die Mutternuklide der natürlichen Zerfallsreihen wie Uran-238 und Thorium-232 (siehe Abb. 3.1) oder Kalium-40 (siehe Kap. 3.5.2). [Taw12]

Radiogen

Radiogene Nuklide sind die Produkte des Zerfalls eines instabilen Atoms. Sind diese Produkte ebenfalls instabil handelt es sich um radiogene Radionuklide. Die Nuklide innerhalb der natürlichen Zerfallsreihen, die in Gleichgewichten durch die Mutter stetig nachgebildet werden, sind Beispiele für radiogene Radionuklide. [Taw12]

Prominente Beispiele hierfür sind Radon-222 und verschiedene Blei-Isotope, die innerhalb der natürlichen Zerfallsreihen entstehen.

Kosmogen

Kosmogene Radionuklide entstehen durch die Wechselwirkung von hochenergetischer kosmischer Strahlung mit der Erdatmosphäre. Beispiele für kosmogene Radionuklide sind

A. Anhang

Beryllium-7 mit einer Halbwertszeit von 53,12 Tagen sowie Tritium und Kohlenstoff-14. [Taw12]

A.1.2. Radioaktive Gleichgewichte

Transientes Gleichgewicht

Im transienten Gleichgewicht ist die Halbwertszeit des Mutternuklids größer als die des Tochternuklids $\lambda_1 < \lambda_2$, allerdings ist die Halbwertszeit des Tochternuklids nicht mehr vernachlässigbar klein gegenüber dem Mutternuklid. Daher gilt für das Aktivitätsverhältnis beider Nuklide

$$\frac{A_2(t)}{A_1(t)} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} > 1. \quad (\text{A.1})$$

Die Aktivität des Tochternuklids ist daher um einen konstanten Faktor größer als die des Mutternuklids. [Sto03]

Kein Gleichgewicht

Ist die Halbwertszeit des Tochternuklids größer als die des Mutternuklids $\lambda_1 > \lambda_2$ kann sich kein Gleichgewicht einstellen. Die Aktivität der Tochter erreicht während des Zerfalls der Mutter ein Maximum, wird nach dem Zerfall der Mutter aber nicht mehr nacherzeugt, sodass die Aktivität mit der Halbwertszeit $t_{2\frac{1}{2}}$ wieder abfällt. [Sto03]

Beispiel eines Gammaskpektrums

Die Abbildung A.1 zeigt ein typisches Gamma-Spektrum eines Radionuklids. Der Full-Energy-Peak, auch als *Photopeak* bezeichnet, entspricht den detektierten Photonen, die ihre gesamte, charakteristische Energie im Detektorkristall abgegeben haben. Für K-40 beträgt diese Energie 1461 keV (siehe Abb. 3.3). Das sogenannte Comptonkontinuum, welches detektierte Impulse unterhalb dieser Energie darstellt, zeigt Photonen, die nur einen Teil ihrer Energie durch eine oder mehrere (Multiple Compton) Comptonstreuungen abgegeben haben. Dabei entspricht die Comptonkante dem maximalen Energieübertrag durch eine Streuung um 180°. Der Peak der Rückstreuung stellt Photonen dar, die

außerhalb des Detektorkristalls um 180° gestreut wurden und ihre restliche Energie im Detektor abgegeben. Der Peak bei 511 keV wird als Annihilationspeak bezeichnet und wird

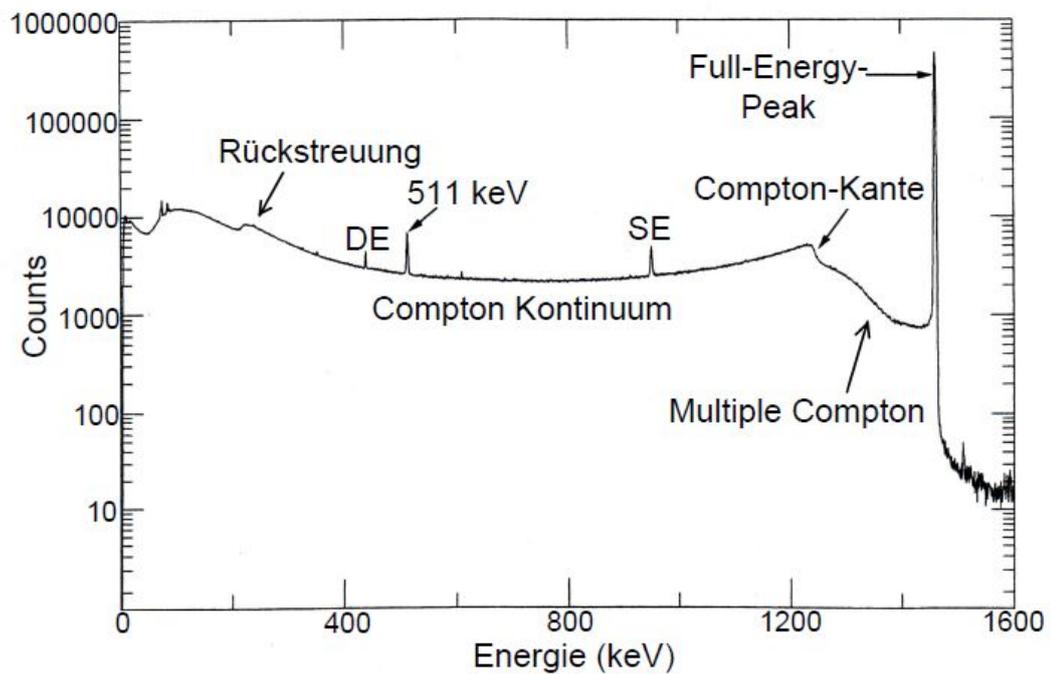


Abbildung A.1.: Das charakteristische K-40 Spektrum eines Gammadetektors

durch Photonen die bei der Annihilation von Elektron/Positron entstehen. Beim Singeescape (SE), bzw. Doubleescape (DE) handelt es sich um Peaks, bei denen eines, bzw. zwei der Annihilationsphotonen nicht den Detektor verlassen oder nicht gleichzeitig detektiert werden.

QCY-StandardTabelle A.1.: **Multinuklidlösung QCY48**

Bestehend aus xQCY-12 (Referenzdatum 01.05.2016) und xPb-210-02 (Referenzdatum 01.11.2008.) für die niederenergetische Efficiency. Die Werte wurden den Datenblättern der Hersteller und der Karlsruher Nuklidkarte entnommen [MPDS12] entnommen.

Radionuklid	Energie in keV	Halbwertszeit in Tagen	spez. Aktivität [Bq/g]	Emissionswahr- scheinlichkeit [%]
Pb-210	46,54	8122,8	3032	4,25
Am-241	59,54	157356	1080	36
Cd-109	88,03	463	15400	3,63
Co-57	122,6	272	521	85,6
Ce-139	165,86	138	682	79,9
Hg-203	279,2	47	2140	81,5
Sn-113	391,69	115	2740	54,9
Sr-85	514,01	65	3320	98,4
Cs-137	661,66	10927,5	2320	85,1
Yt-88	898,04 / 1836,06	107	5340	94 / 99,4
Co-60	1173,23 / 1332,49	1894,1	2770	99,86 / 99,98

The IAEA-TEL-2012-03 worldwide open proficiency test

Laboratory No. 162, Results submitted on 2013-04-09

2014-04-30

Evaluation on Sample 4, Hay

Reference Date: 01-01-2012

Analyte	IAEA Value [Bq/kg d.m.]	IAEA Unc [Bq/kg d.m.]	Lab Value [Bq/kg d.m.]	Lab Unc [Bq/kg d.m.]	Lab Unc %	Rel. Bias %	u-Test	Ratio Lab/IAEA	Accuracy	P(%)	Precision	Final Score
Cs-134	316	20	344.6	22.6	6.56	9.05	0.95	1.09	A	9.11	A	A
Cs-137	815	24	900.7	45.3	5.03	10.52	1.67	1.11	A	5.83	A	A

Evaluation on Sample 5, Soil

Reference Date: 01-01-2012

Analyte	IAEA Value [Bq/kg d.m.]	IAEA Unc [Bq/kg d.m.]	Lab Value [Bq/kg d.m.]	Lab Unc [Bq/kg d.m.]	Lab Unc %	Rel. Bias %	u-Test	Ratio Lab/IAEA	Accuracy	P(%)	Precision	Final Score
Ac-228	32.4	1.6	34.7	3.1	8.93	7.10	0.66	1.07	A	10.21	A	A
Am-241	1.78	0.1										
Cs-137	118.6	2.9	123.6	6.3	5.10	4.22	0.72	1.04	A	5.65	A	A
K-40	207.7	8.3	241.0	14.8	6.14	16.03	1.96	1.16	A	7.33	A	A
Pb-210	595	19	616.9	66.2	10.73	3.68	0.32	1.04	A	11.20	A	A
Pb-212	31.0	1.2	38.5	3.6	9.35	24.19	1.98	1.24	N	10.12	A	N
Po-210	573	25										
Pu-239+240	4.74	0.1	10.0	0.6	6.00	110.97	8.65	2.11	N	6.36	N	N
Sr-90	25.4	1.9										
Th-208	11.5	0.6	13.2	1.5	11.36	14.78	1.05	1.15	A	12.50	A	A
U-238	23.6	0.7										

Abbildung A.2.: Ergebnisse der IAEA

Tabelle A.2.: Wasserproben der gamma-spektrometrischen Untersuchung

Name der Probe	Abk.	Gebiet	Art des Gewässers	Referenzdatum	Geometrie des Messpräparats	Bezugsmasse [kg]	Ergebnisse aus [Faß16]
Regenwasser Juni/2	RW_Jun2	Fuhrberger Feld	Regenwasser	27.08.2016	Filterpapier	21,972	ja
Regenwasser Juli/1	RW_Jul1	Fuhrberger Feld	Regenwasser	31.07.2016	Filterpapier	25,864	ja
Meitzer Teich III	MT_III	Fuhrberger Feld	Oberflächenwasser (stehend)	16.06.2017	Petrischale	43,760	nein
Wietze II	Wi_II	Fuhrberger Feld	Oberflächenwasser (fließend)	12.10.2016	Petrischale	36,604	ja
Wulbeck II	Wu_II	Fuhrberger Feld	Oberflächenwasser (fließend)	22.10.2016	Petrischale	41,720	ja
Schwengelpumpe V	SP_V	Fuhrberger Feld	Grundwasser (3m)	14.10.2016	Petrischale	42,005	ja
Schwengelpumpe VII	SP_VII	Fuhrberger Feld	Grundwasser (3m)	24.04.2017	Petrischale	44,133	nein
Pegelbrunnen 20041	P_041	Fuhrberger Feld	Grundwasser	23.06.2017	Petrischale	43,299	nein
Pegelbrunnen 20304	P_304	Fuhrberger Feld	Grundwasser	27.06.2017	Petrischale	43,510	nein
Pegelbrunnen 20429	P_429	Fuhrberger Feld	Grundwasser	18.04.2017	Petrischale	39,302	nein
Pegelbrunnen 20439	P_439	Fuhrberger Feld	Grundwasser	20.06.2017	Petrischale	42,372	nein
Rohwasser II	Roh_II	Fuhrberger Feld	Grundwasser (28m)	30.06.2017	Petrischale	65,174	nein
unn Reinwasser	ReinW	Fuhrberger Feld	Grundwasser (aufbereitet)	04.08.2016	Filterpapier	23,200	ja
Sösetalsperre Oberfläche	ST_Ob	Westharz	Oberflächenwasser (stehend)	10.07.2017	Petrischale	45,976	nein
Sösetalsperre Ablauf	ST_Ab	Westharz	Oberflächenwasser (stehend)	04.07.2017	Petrischale	42,741	nein
Sösetalsperre Sickerwasser	ST_Si	Westharz	Oberflächenwasser (stehend)	13.07.2017	Filterpapier	4,061	nein

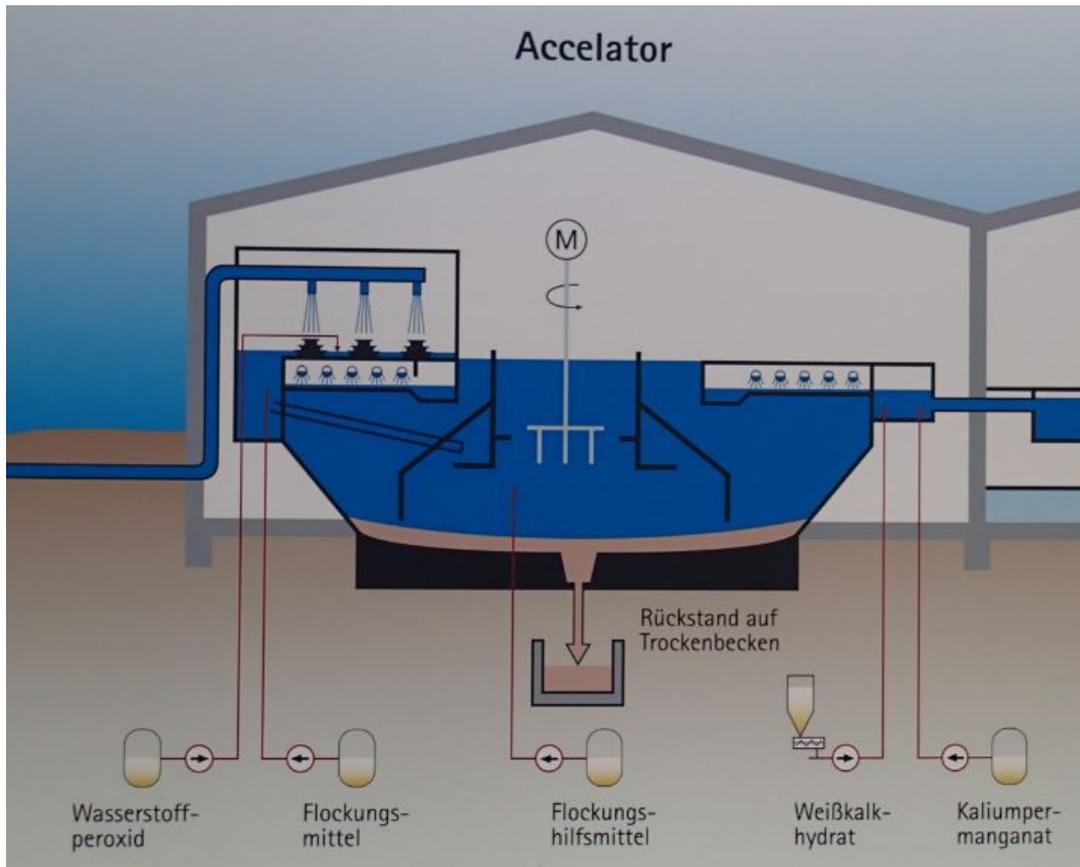


Abbildung A.3.: Aufbereitung des Rohwassers im Wasserwerk

Berechnung der zusätzlichen effektiven Jahresdosis durch Trinkwasser

In Tabelle A.3 sind die Referenz-Aktivitätskonzentrationen von verschiedenen Radionukliden dargestellt. "Die angegebenen Referenz-Aktivitätskonzentrationen stellen Werte dar, die für eine Dosis von 0,1 mSv/a unter Berücksichtigung der Ingestion-Dosiskoeffizienten für Erwachsene sowie einer Verzehrrate von 730 Litern Trinkwasser pro Jahr berechnet wurden." [BHW17] Mit Hilfe der Formel A.2 kann die zusätzliche Dosis durch die gemessenen mittleren Aktivitätskonzentrationen $C_{r, mess}$ und der Referenz-Aktivitätskonzentrationen $C_{r, ref}$ für r Nuklide berechnet werden.

$$E = \sum_r \frac{C_{r, mess}}{C_{r, ref}} \quad (A.2)$$

Tabelle A.3.: Referenz-Aktivitätskonzentrationen [BMG16]

Radionuklid	Referenz-Aktivitätskonzentrationen [Bq/l]
U-238	3
Ra-226	0,5
Ra-228	0,2
Pb-210	0,2
Cs-137	11

Danksagung

Ich möchte mich an dieser Stelle bei Prof. Dr. Clemens Walther für die Möglichkeit, diese Abschlussarbeit am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz zu schreiben, bedanken. Vor allem möchte ich mich auch bei Dr. Stefan Bister bedanken, durch den ich zu jeder Zeit Beratung und Unterstützung bei der Bewältigung von Problemen hatte und durch dessen intensive Betreuung und kritischen Anmerkungen meine Arbeit positiv begleitet wurde.

Außerdem danke ich Dr. Jan-Willem Vahlbruch für die Korrekturen und Anmerkungen zu meiner Arbeit.

Weiterhin möchte ich Tobias Kampmeier für die Einarbeitung in die Gamma-Spektrometrie sowie Karl-Heinz Iwanek für die Erstellung der Wassergebietskarte danken.

Ein weiterer Dank gilt meiner Freundin, die mich in dieser arbeitsintensiven Phase stets unterstützt hat und dadurch zum Gelingen dieser Arbeit maßgeblich beigetragen hat.

Abschließend möchte ich den Liquidatoren und allen Mitarbeitern des IRS dafür danken, mir eine schöne Zeit am Institut bereitet zu haben und mich stets bei Fragen und Problemen unterstützt zu haben.